



# Synergie expérimentale impliquant la mesure lidar pour la caractérisation optique et microphysique de l'aérosol : applications à la qualité de l'air et au transfert radiatif.

Jean-Christophe Raut

## ► To cite this version:

Jean-Christophe Raut. Synergie expérimentale impliquant la mesure lidar pour la caractérisation optique et microphysique de l'aérosol : applications à la qualité de l'air et au transfert radiatif.. Océan, Atmosphère. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2008. Français. NNT : . tel-00323901

**HAL Id: tel-00323901**

**<https://theses.hal.science/tel-00323901>**

Submitted on 23 Sep 2008

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

**Thèse de doctorat de l'Université Paris VI**  
**(Université Pierre et Marie Curie)**

**Ecole Doctorale des Sciences de l'Environnement d'Ile de France**

Spécialité

Physique de l'atmosphère et télédétection

Présentée par

**Jean-Christophe RAUT**

Pour obtenir le grade de Docteur de l'Université Paris VI

**Synergie expérimentale impliquant la mesure lidar pour la  
caractérisation optique et microphysique de l'aérosol :  
applications à la qualité de l'air et au transfert radiatif.**

Soutenue le 18/09/2008

Devant le jury composé de :

M.	Patrick CHAZETTE	Directeur de thèse
Mme	Cathy LIOUSSE	Rapporteur
M.	Robert DELMAS	Rapporteur
Mme	Béatrice MARTICORENA	Examineur
M.	Pierre-Henri FLAMANT	Examineur
Mme	Laurence PICON	Professeur Paris 6

Thèse préparée à l'Institut Pierre-Simon Laplace

(Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement)

Financée par le Commissariat à l'Energie Atomique



# Remerciements

---

Ce travail a été effectué au Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement, dirigé successivement par Laurent Turpin et Robert Vautard.

Je tiens tout d'abord à remercier les personnes qui m'ont fait l'honneur de participer à mon jury de thèse : Cathy Liousse, Robert Delmas, Béatrice Marticorena, Pierre Flamant et Laurence Picon. Merci pour le temps consacré à la lecture de mon manuscrit et pour l'attention portée lors de ma soutenance.

Mes remerciements les plus vifs vont à Patrick Chazette qui a dirigé ces activités de recherche. Avec un intérêt constant porté à mon travail, une écoute et une disponibilité inconditionnelles, assorties d'un humour toujours bienvenu, il a su efficacement guider cette thèse, me donner confiance en moi et m'intéresser au travail expérimental qu'il affectionne tant. J'ai particulièrement apprécié son dynamisme si contagieux.

Je suis très reconnaissant à Joseph Sanak pour m'avoir fait découvrir le volet instrumental, complémentaire de mon travail de recherche, avec une vision passionnée et un soin très recherché. Un grand merci aux membres de l'équipe PEGAAS, François Dulac, Maï Pham, Valérie Gros et Bernard Bonsang, pour leur soutien et leurs questions pleines de bon sens, souvent précieuses.

J'ai réalisé cette thèse en compagnie de Sébastien Berthier, Sang-Woo Kim, Hans Grigaut-Desbrosses, Sophie Loaec, Louis Béranger, Aurore Collin, Stéphane Devaux, Camille Viatte, Cécile Gaimoz, Rémy Dallmayr, Vincent Teutsch, Odile D'Argouges, dont la présence, l'amitié et le rire m'ont été indispensables. Merci pour tous ces moments partagés. Je remercie également mes camarades de LIMAG à l'X, Fabien Gibert, Juan Cuesta, Dimitri Edouart, Laetitia Estevan, Jihane Sayadi, Fabien Marnas.

Un grand merci à toutes les personnes avec qui j'ai pu collaborer ici ou là : Jean Sciare et Olivier Favez pour les analyses chimiques et Fabienne Maignan pour les données MODIS; Laurent Sauvage, Mélody Lardier et Simone Lolli de Léosphère ; Marilyne Tombette, Marc Bocquet et Bruno Sportisse du CEREAS aux Ponts et Chaussées ; Aude Fortain, Nicolas Paradot, Cora Cremezi et Elisa Masson de la SNCF ; Cyrille Flamant et Cyndie Lemaître au SA, et toute l'équipe de Parisfog. I am especially grateful to foreigner scientists for fruitful collaborative work, particularly Prof. Yoon from Seoul National University, Jim Haywood, Simon Osborne and Ben Johnson from English MetOffice.

Pour finir, un merci tout spécial à ma famille et à mes amis, le groupe Alegria en particulier, pour m'avoir toujours soutenu et encouragé au cours de ces trois années. Le moral à toute épreuve, il vient de là !



## Remerciements

# Résumé

---

### *Synergie expérimentale impliquant la mesure lidar pour la caractérisation optique et microphysique de l'aérosol : applications à la qualité de l'air et au transfert radiatif.*

Les travaux présentés visent à améliorer notre compréhension de l'évolution des propriétés physico-chimiques et optiques de l'aérosol de pollution urbaine, désertique ou issu de la combustion de biomasse, en particulier son indice complexe de réfraction et son albédo de simple diffusion. Cette caractérisation est nécessaire pour répondre aux problématiques scientifiques et sociétales associées à la qualité de l'air et à l'évolution du climat. L'étude est basée sur une complémentarité entre les plateformes de mesures in situ au sol ou aéroportées et les observations de télédétection active et passive. La mesure lidar en particulier constitue un apport incontournable pour évaluer la variabilité horizontale et surtout verticale des propriétés des aérosols dans la couche limite atmosphérique, mais aussi dans la couche résiduelle, ou dans les couches injectées depuis la couche limite dans la troposphère libre. La méthodologie d'analyse met en évidence l'importance de la provenance géographique, l'impact des processus de vieillissement et des phénomènes dynamiques dans l'évolution des propriétés structurales, optiques et hygroscopiques des aérosols. Une telle détermination précise des propriétés de chacune des couches d'aérosols est indispensable pour le calcul des flux radiatifs et des taux d'échauffement dans la colonne atmosphérique. L'impact radiatif combiné des aérosols d'origine désertique et des aérosols issus des feux de biomasse observés au-dessus de Niamey (Niger) a ainsi été évalué lors de la saison sèche. Ces résultats suggèrent l'importance d'une meilleure prise en compte, dans les modèles, de ces propriétés cruciales des aérosols dans chacune des couches.

**Mots-clés :** synergie instrumentale, caractérisation optique de l'aérosol, indice complexe de réfraction, lidar, forçage radiatif de l'aérosol

## Abstract

---

### *Experimental synergy combining lidar measurements so as to optically characterize aerosols: applications to air quality and radiative forcing*

The work carried out in this study is devoted to a better understanding of the evolution of aerosol physical, chemical and optical properties for urban pollution aerosols, dust and biomass burning particles. It mainly concerns the complex refractive index and the single-scattering albedo. Such a characterisation is indeed necessary so as to fulfil the requirements of scientific and societal air quality and global climate evolution questions. Our study is based on a synergy between different measurements platforms: ground-based or airborne measurements, together with active and passive remote sensing observations. Lidar in particular turns out to be an essential tool in order to assess horizontal and vertical variability of aerosol microphysical and optical properties in the atmospheric boundary layer, but also in the residual layer, as well as in layers transported from the boundary layer to the free troposphere. The original methodology we developed highlights the importance of the geographical origin, the impact of aging and dynamical processes in the evolution of structural, optical and hygroscopic aerosol features. The related accurate determination of the properties in each aerosol layer is required for radiative fluxes and heating rates calculations in the atmospheric column. The radiative impact of both dust particles and biomass burning aerosols observed over the region of Niamey (Niger) was thus assessed during the dry season. These results reveal the need of a better characterisation of those significant aerosol properties for each layer in models.

**Keywords :** experimental synergy, aerosol optical characterization, complex refractive index, lidar, aerosol radiative forcing

# Sommaire

<b>REMERCIEMENTS.....</b>	<b>3</b>
<b>RESUME .....</b>	<b>5</b>
<b>ABSTRACT .....</b>	<b>6</b>
<b>SOMMAIRE.....</b>	<b>7</b>
<b>CHAPITRE 1.....</b>	<b>11</b>
<b>1 INTRODUCTION GENERALE.....</b>	<b>11</b>
1.1 Contexte scientifique .....	11
1.2 Pourquoi s'intéresser aux aérosols ? .....	12
1.3 Rôle de l'aérosol sur la pollution atmosphérique et le climat.....	13
1.3.1 Impact sur la pollution .....	13
1.3.2 Impact sur le climat.....	14
1.3.2.1 Effet radiatif direct .....	15
1.3.2.2 Effet radiatif semi-direct.....	16
1.3.2.3 Effet radiatif indirect .....	16
1.4 Enjeux scientifiques .....	18
1.5 Organisation du manuscrit.....	19
1.5.1 Objectifs de la thèse.....	19
1.5.2 Plan de la thèse .....	20
<b>CHAPITRE 2.....</b>	<b>22</b>
<b>2 L'AEROSOL : DES PROPRIETES MICROPHYSIQUES A L'INTERACTION AVEC LE RAYONNEMENT .....</b>	<b>22</b>
2.1 Introduction .....	22
2.2 Propriétés microphysiques des aérosols .....	22
2.2.1 Origine et composition chimique.....	22
2.2.2 Distribution granulométrique .....	24
2.2.3 Indice de réfraction .....	31
2.3 Diffusion simple et paramètres optiques .....	35

# Sommaire

2.3.1	Théorie électromagnétique de la diffusion : matrices de phase et d'amplitude .....	35
2.3.2	Propriétés optiques d'un aérosol.....	36
2.3.3	Propriétés optiques de la distribution d'aérosols .....	40
2.3.4	Domaine de diffusion Rayleigh .....	44
<b>2.4</b>	<b>Influence de l'effet de l'eau et de la forme des particules sur leurs propriétés microphysiques et optiques .....</b>	<b>45</b>
2.4.1	Hygroscopicité.....	45
2.4.2	Asphéricité des aérosols .....	50
<b>2.5</b>	<b>La diffusion multiple : équation de transfert radiatif.....</b>	<b>56</b>
2.5.1	Equation différentielle du transfert radiatif.....	56
2.5.2	Fonctions sources et équation intégral-différentielle du transfert radiatif.....	57
2.5.3	Approximation de la diffusion primaire .....	59
2.5.4	Résolution numérique de l'équation de transfert radiatif.....	59
2.5.4.1	<i>Décomposition en polynômes de Legendre .....</i>	<i>60</i>
2.5.4.2	<i>Méthodes à 2 flux, approximation de Delta-Eddington.....</i>	<i>60</i>
2.5.4.3	<i>Méthode des ordonnées discrètes .....</i>	<i>62</i>
2.5.5	Forçage radiatif de l'aérosol .....	63
<b>CHAPITRE 3.....</b>	<b>64</b>	
<b>3</b>	<b>L'APPROCHE MULTI-INSTRUMENTEE : COMPLEMENTARITE DES MESURES IN SITU ET DE TELEDETECTION.....</b>	<b>64</b>
<b>3.1</b>	<b>Instrumentation in situ .....</b>	<b>64</b>
3.1.1	Propriétés microphysiques des aérosols.....	64
3.1.1.1	<i>Composition chimique par prélèvements sur filtres .....</i>	<i>64</i>
3.1.1.2	<i>Mesures de la masse de l'aérosol .....</i>	<i>65</i>
3.1.1.3	<i>Restitution de granulométrie.....</i>	<i>68</i>
3.1.2	Propriétés optiques des aérosols.....	75
3.1.2.1	<i>Mesures de diffusion.....</i>	<i>75</i>
3.1.2.2	<i>Mesures d'absorption .....</i>	<i>77</i>
<b>3.2</b>	<b>Télédéttection passive – Radiométrie .....</b>	<b>80</b>
3.2.1	Taux de photodissociation de la molécule de dioxyde d'azote .....	80
3.2.2	Restitution de l'albédo de surface par spectroradiométrie .....	81
3.2.3	Epaisseur optique des aérosols.....	83
<b>3.3</b>	<b>Télédéttection active – Mesure LIDAR.....</b>	<b>87</b>
3.3.1	Principe .....	87
3.3.2	Lidar à rétrodiffusion Mie .....	89
3.3.3	Instruments utilisés dans ce travail.....	91
3.3.4	Théorie du signal lidar .....	94
3.3.5	Facteur de recouvrement .....	98
3.3.6	Diffusion Rayleigh .....	98
3.3.7	Analyse du signal lidar.....	100
3.3.7.1	<i>Information directe .....</i>	<i>100</i>
3.3.7.2	<i>Inversion du signal .....</i>	<i>102</i>
3.3.8	Sources de bruit .....	107
3.3.9	Détection des structures d'aérosols par la mesure lidar .....	109
3.3.9.1	<i>Structure verticale de la troposphère .....</i>	<i>109</i>
3.3.9.2	<i>Détection de la hauteur de la CLA .....</i>	<i>109</i>
3.3.9.3	<i>Estimation des facteurs d'émission dans la CLA .....</i>	<i>111</i>
3.3.9.4	<i>Détection de couches dans la troposphère libre .....</i>	<i>112</i>
3.3.9.5	<i>Application à l'observation spatiale : la validation de CALIOP .....</i>	<i>114</i>

# Sommaire

<b>3.4 Conclusions .....</b>	<b>116</b>
<b>CHAPITRE 4.....</b>	<b>117</b>
<b>4 RESTITUTION DE L'INDICE COMPLEXE DE REFRACTION PAR COMPLEMENTARITE ENTRE MESURES IN SITU ET MESURES DE TELEDETECTION ACTIVE ET PASSIVE .....</b>	<b>117</b>
4.1 Notion de réfraction spécifique.....	117
4.2 Indices de réfraction des principaux constituants de l'aérosol .....	118
4.3 Lois de mélange pour l'indice de réfraction.....	121
4.4 Restitution de l'ACRI pour l'aérosol parisien .....	123
4.5 Application (Article de Raut and Chazette, 2007) .....	125
4.6 Conclusions .....	142
4.7 Etude complémentaire : pollution particulaire dans la colonne d'air parisienne .....	144
4.7.1 Exploitation des résultats de la synergie expérimentale pour la conversion optique-masse.....	144
4.7.2 Application aux profils lidar obtenus durant LISAIR.....	147
<b>CHAPITRE 5.....</b>	<b>151</b>
<b>5 DISCRIMINATION VERTICALE DES COUCHES D'AEROSOLS PAR LA CONNAISSANCE DE LEURS INDICES DE REFRACTION .....</b>	<b>151</b>
5.1 Introduction .....	151
5.2 Présentation de la campagne ESQUIF 2000 .....	151
5.3 Profils verticaux d'ACRI en région parisienne .....	152
5.3.1 Généralités .....	152
5.3.2 Application (Article de Raut and Chazette, 2008a) .....	156
5.4 Conclusions .....	174
5.4.1 Synthèse.....	174
5.4.2 Influence de la masse d'air sur les propriétés optiques et microphysiques de l'aérosol .....	174
5.4.3 Rôle de l'état de mélange des aérosols .....	175
5.4.4 Influence de l'hygroscopicité .....	176
5.4.5 Réponses aux problématiques de qualité de l'air et de transfert radiatif .....	176
<b>CHAPITRE 6.....</b>	<b>178</b>
<b>6 APPLICATION: IMPACTS DIRECT ET SEMI-DIRECT SUR LES BILANS ENERGETIQUES EN ZONE SAHELIENNE (AMMA) .....</b>	<b>178</b>
6.1 Principe.....	178
6.2 La campagne AMMA .....	179
6.2.1 Le cadre général de la campagne AMMA .....	179

# Sommaire

6.2.2	Importance des aérosols en Afrique de l'Ouest.....	179
6.2.3	Les périodes d'observations spéciales (SOP) durant AMMA .....	182
6.2.4	La SOP-0 .....	182
<b>6.3</b>	<b>Situations rencontrées .....</b>	<b>184</b>
<b>6.4</b>	<b>Méthodologie envisagée .....</b>	<b>185</b>
<b>6.5</b>	<b>Impact radiatif des structures multicouches de particules (Article de Raut and Chazette, 2008b).....</b>	<b>188</b>
<b>6.6</b>	<b>Synthèse et conclusions .....</b>	<b>213</b>
6.6.1	Propriétés optiques restituées des couches d'aérosols.....	213
6.6.2	Forçages radiatifs associés.....	213
6.6.3	Effets combinés des poussières désertiques et des aérosols de feux de biomasse .....	214
6.6.4	Conclusions sur l'estimation rigoureuse des indices de réfraction.....	214
<b>CHAPITRE 7.....</b>	<b>.....</b>	<b>216</b>
<b>7</b>	<b>CONCLUSIONS GENERALES .....</b>	<b>216</b>
<b>7.1</b>	<b>Synthèse .....</b>	<b>216</b>
<b>7.2</b>	<b>Perspectives.....</b>	<b>217</b>
7.2.1	Intérêt du lidar multi-longueurs d'onde .....	217
7.2.2	Amélioration de la connaissance de l'impact des feux de forêt sur la dynamique et le climat.....	217
7.2.3	Extension à plus grande échelle.....	218
7.2.4	Caractérisation des aérosols dans l'infrarouge .....	219
<b>BIBLIOGRAPHIE .....</b>	<b>.....</b>	<b>221</b>
<b>ANNEXE A.....</b>	<b>.....</b>	<b>243</b>
<b>LISTE DES PUBLICATIONS.....</b>	<b>.....</b>	<b>243</b>
<b>ANNEXE B.....</b>	<b>.....</b>	<b>244</b>
<b>ARTICLE DE RAUT ET AL. (2008A) .....</b>	<b>.....</b>	<b>244</b>
<b>ANNEXE C .....</b>	<b>.....</b>	<b>256</b>
<b>ARTICLE DE RAUT ET AL. (2008B) .....</b>	<b>.....</b>	<b>256</b>

# Chapitre 1

---

## 1 Introduction générale

### 1.1 Contexte scientifique

---

Les problèmes d'environnement à l'échelle planétaire ont pris depuis quelques années une importance croissante dans notre vie au quotidien, que ce soit par la médiatisation qui a pu en être faite ou par les préoccupations sociétales que les discours de la classe politique ont relevées, sans doute à juste titre. L'industrialisation de nos sociétés a introduit des perturbations significatives au sein de cette complexe et fragile machine que constitue le système climatique terrestre. Dans ce monde qui change, l'impact des activités humaines sur ce dernier est devenu aujourd'hui l'un des enjeux scientifiques et de société majeurs pour les prochaines décennies. Cette sensibilité accrue des populations touche tout particulièrement les problèmes relatifs à l'atmosphère terrestre, c'est-à-dire littéralement la sphère de gaz (« atmosphaira ») qui enveloppe notre planète. Cette définition étymologique est toutefois très réductrice, tant cette couche d'épaisseur infime par rapport au rayon de la terre constitue un milieu hétérogène nécessaire à la présence de la vie sur Terre et qui est le siège d'un très grand nombre d'interactions entre molécules gazeuses, particules solides et gouttelettes liquides, cet ensemble étant en constante interaction avec le rayonnement solaire.

Des changements climatiques à grande échelle ont été mis en évidence. Aux variations naturelles du bilan radiatif viennent en effet s'ajouter des variations dues à l'activité de l'homme. En intervenant par ses rejets sur la composition de l'atmosphère, l'homme modifie le bilan radiatif terrestre et est donc susceptible de modifier le climat. Les rejets de certains gaz ne cessent d'augmenter, la concentration atmosphérique du CO<sub>2</sub> passant de ~270 à ~350 ppmv du début de l'ère industrielle à nos jours (Prentice et al., 2001). Au cours de la même période la température globale à la surface de la Terre a augmenté de 0.5 à 0.7 °C, et le niveau moyen des mers est monté de 10 à 20 cm, laissant envisager une tendance au réchauffement global de la planète induite par les rejets anthropiques de CO<sub>2</sub> et plus généralement de gaz à effet de serre comme le méthane, l'ozone, les composés azotés, les composés organiques volatiles, les composés organochlorés, et de particules absorbantes comme les aérosols de combustion (IPCC, 2007). Ce phénomène très complexe est en réalité le résultat d'interactions nombreuses. Non seulement tous les composants de l'atmosphère, et pas seulement les gaz à effet de serre, jouent un rôle dans le changement climatique, mais les autres composantes du système Terre (océan, biosphère, cryosphère...), et évidemment le soleil, font partie de ce que l'on appelle "la machine climatique".



### 1.2 Pourquoi s'intéresser aux aérosols ?

L'étude du changement climatique n'est donc pas simple : le recul statistique n'est pas forcément suffisant, certains processus font encore l'objet de recherches et certains constituants de l'atmosphère sont encore mal connus pour leur durée de vie ou leurs actions sur le climat. Parmi ces derniers, les aérosols ont connu un regain d'intérêt à la fin des années 1980 (Charlson et al., 1987). L'attrait pour l'étude de ces derniers a vraiment débuté après que l'on ait montré que les sulfates n'étaient pas les seuls aérosols ayant un impact sur le bilan radiatif terrestre (Jacobson, 2001). Les aérosols sont, par définition, toutes les particules liquides ou solides en suspension dans l'atmosphère, à l'exception des gouttelettes d'eau et des cristaux qui forment les nuages. S'ils ne sont, comparés aux molécules gazeuses, qu'un constituant mineur de l'atmosphère, les aérosols interagissent de multiples façons avec les nuages, le rayonnement et l'atmosphère, et ont la capacité de modifier le comportement de la machine climatique. Ils sont également particulièrement intéressants à caractériser car l'activité humaine tend à augmenter leurs concentrations dans l'atmosphère, principalement pour la composante carbonée. Plus précisément, la taille des aérosols atmosphériques varie de quelques nanomètres à plusieurs centaines de micromètres, balayant ainsi une gamme de plus de cinq ordres de grandeur (Whitby and Cantrell, 1976). Les aérosols sont principalement le résultat de phénomènes naturels pour près de 80-95% de la concentration massique en moyenne annuelle de particules dans l'atmosphère (Chapitre 2). Les principales sources connues sont les éruptions volcaniques, les embruns marins, les émissions par les végétations, les feux de forêt ou l'érosion mécanique du sol par les vents (IPCC, 2007). Toutefois, ils sont également produits par des activités anthropiques, leurs sources étant surtout la circulation automobile, l'industrie, le chauffage domestique qui utilisent des combustibles fossiles, les feux agricoles et les feux de forêt. En fonction de leur taille, les aérosols ont des origines diverses, sont soumis à des processus de croissance, de vieillissement, de transport, de dépôt différents, possèdent des propriétés optiques et des durées de vie extrêmement variables. Leur capacité à absorber de l'eau varie fortement selon le type d'aérosols en fonction de l'humidité relative. À travers le témoignage des satellites scrutant la planète (Fig. 1.1), on peut constater que le globe s'entoure de plus en plus de panaches d'aérosols dont la distribution spatiale est hétérogène contrairement aux gaz à effet de serre.

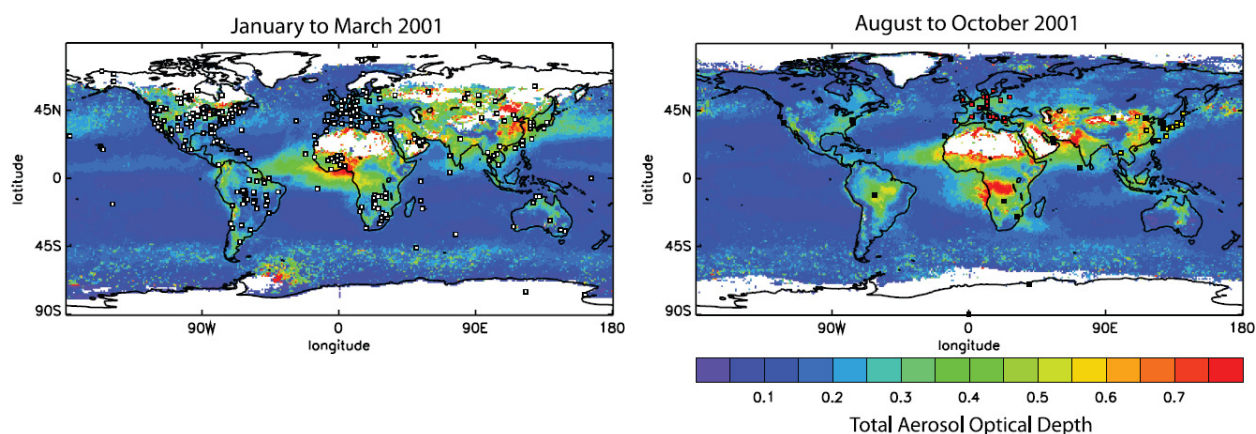


Fig. 1.1 : Epaisseur optique de l'aérosol à 355 nm déterminé par MODIS de janvier à mars 2001 (gauche) et d'août à octobre 2001 (droite). La figure de gauche montre également la localisation des sites AERONET (carrés blancs) qui ont fonctionné (pas nécessairement de manière continue) depuis 1996. La figure de droite présente également la localisation des

différents réseaux lidar pour la mesure de l'aérosol (rouge : EARLINET, orange : ADNET, noir : MPLNET). Source : IPCC 2007.

En particulier, on remarque que les panaches d'aérosols sont localisés au voisinage des zones sources d'émission. Leur temps de résidence dans l'atmosphère est relativement faible comparé aux gaz à effet de serre, il varie entre 4 et 7 jours (voire 1 jour pour les sels de mer, Andreae, 1994). En effet, quelques jours après leur émission, la majorité de ces particules se dépose au sol (Slinn and Slinn, 1980) par gravitation (dépôt sec) ou est lessivée par des précipitations (dépôt humide). Par conséquent, il existe une grande variabilité spatiale et temporelle des concentrations des aérosols, à l'échelle régionale et journalière. Cette spécificité rend difficile l'évaluation de l'estimation des forçages radiatifs des aérosols à l'échelle globale. Sous le terme générique d'« aérosols », c'est en fait une multitude de particules aux caractéristiques différentes que l'on regroupe. C'est de cette variabilité extrême que naissent les difficultés de l'étude des aérosols mais aussi tout le défi scientifique. A l'échelle urbaine, les questions qui se posent concernant la pollution atmosphérique sont relatives à la prédiction des pics de pollution et aux facteurs les provoquant ainsi qu'à la dégradation de la qualité de l'air et à son impact sur la santé publique : le nombre croissant d'allergies et d'asthmes liés à la pollution particulaire atmosphérique dans les zones urbaines et la recrudescence des admissions dans la plupart des hôpitaux lors d'épisodes de pollutions indiquent que ces particules en suspension sont aussi impliquées dans un bon nombre d'affections pulmonaires par la pénétration profonde dans le système respiratoire humain (Donaldson et al., 1998).

### 1.3 Rôle de l'aérosol sur la pollution atmosphérique et le climat

---

#### 1.3.1 Impact sur la pollution

La pollution atmosphérique, dans les zones urbaines particulièrement, n'est pas un phénomène nouveau. Au premier siècle de notre ère, Sénèque dénonçait déjà « l'oppressant air de la ville et la puanteur des fumantes cheminées qui, une fois leurs feux allumés, vomissent toutes les pestilentielles fumées et suies qu'elles contiennent ».

Les aérosols peuvent avoir des effets nocifs sur la santé par la présence de composés toxiques à leur surface pouvant se solubiliser plus ou moins en présence d'eau. Lorsqu'ils sont alors inhalés et piégés dans les voies respiratoires, ils multiplient les risques de maladies ou en aggravent certaines. Selon des études épidémiologiques, la présence de certains constituants peut aggraver les conséquences sur la santé comme par exemple les métaux lourds et beaucoup de composés organiques tels que les composés aromatiques polycycliques qui augmentent les propriétés cancérogènes et mutagènes de ces particules (Enya et al., 1997). La toxicité des particules dépend non seulement de leur concentration et composition chimique, mais aussi et surtout de leur taille car les plus fines particules sont reconnues pour être les plus néfastes étant donné qu'elles peuvent pénétrer plus profondément dans le système respiratoire humain (Donaldson et al., 1998 ; Moshhammer and Neuberger, 2003; Hauck et al., 2004) jusqu'aux alvéoles pulmonaires (Fig. 1.2).

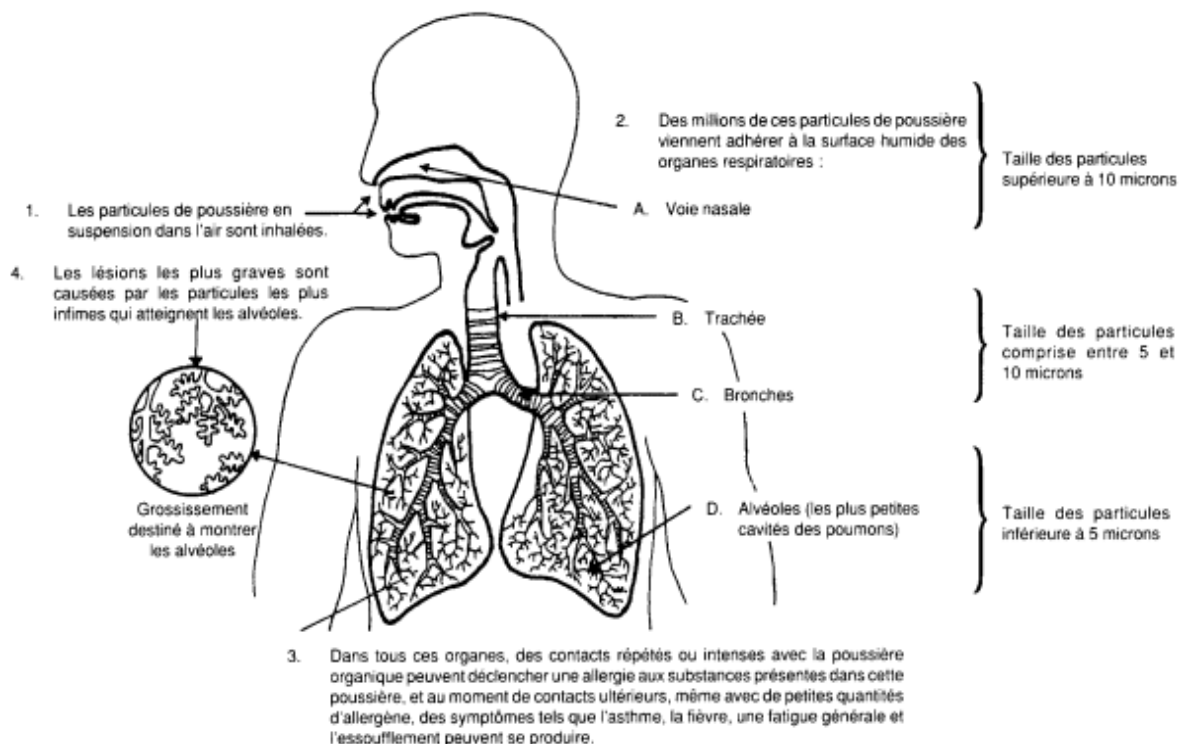


Fig. 1.2 : Pénétration des particules aérosols à différents niveaux de l'appareil respiratoire humain en fonction de leur taille (<http://www.gov.on.ca/OMAFRA/french/>).

Les aérosols agissent également en tant que polluant atmosphérique en favorisant l'apparition de pluies acides ou en réduisant la visibilité dans les villes par l'absorption et la réflexion de la lumière solaire (Pueschel et al., 1986). Ils jouent également un rôle non négligeable en favorisant la formation ou la destruction de certains composés par des réactions chimiques hétérogènes à leur surface (Hofmann and Solomon, 1989 ; Dentener et al., 1996 ; Kirchner et al., 2000 ; Jacob 2000) ou en modifiant la quantité de rayonnement solaire disponible pour la photodissociation de certaines molécules comme l'ozone (Dickerson et al., 1997 ; Jacobson, 1998), le dioxyde d'azote (Randriamiarisoa et al., 2004a) ou le formaldéhyde.

### 1.3.2 Impact sur le climat

Afin d'évaluer au mieux le bilan radiatif terrestre, le dernier rapport du GIEC (Groupe d'experts Intergouvernemental sur l'Evolution du Climat ou IPCC en anglais, pour Intergovernmental Panel on Climate Change) publié en 2007, soulignait l'importance d'une meilleure prise en compte des aérosols et de leur influence sur le rayonnement solaire mais aussi terrestre. Leur effet est difficile à quantifier car d'une part, il dépend de leurs propriétés physico-chimiques et d'autre part, la distribution de ces aérosols autour de la planète est très hétérogène. Les processus d'interaction entre les aérosols, le rayonnement, et les autres composantes du système climatique sont complexes. L'influence des facteurs sur le climat peut être étudiée en utilisant le concept de forçage radiatif pour désigner la variation de l'éclairement énergétique vertical net - exprimé en watts par mètre carré ( $\text{W.m}^{-2}$ ) - à la tropopause par suite d'un changement interne ou d'une modification du forçage externe du système climatique. Cette évaluation doit être effectuée après ajustement des températures stratosphériques mais avec des conditions de température et d'humidité de la troposphère et

# 1. Introduction générale

de la surface maintenues fixes. Des études ont montré que l'effet des aérosols sur le budget radiatif pouvait en partie compenser l'effet des gaz à effet de serre à l'échelle globale (Charlson et al., 1990; Kiehl and Briegleb, 1993; Taylor and Penner, 1994; Cox et al., 1995) et même largement inverser cet effet à l'échelle régionale (Léon et al., 2002). La Fig. 1.3 donne le forçage radiatif additionnel associé aux principales composantes du bilan radiatif (IPCC, 2007). Les aérosols constituent une source majeure d'incertitudes sur la quantification du forçage radiatif terrestre et les prévisions décennales de changement climatique. Aussi, même si à l'échelle globale le forçage radiatif induit par les aérosols anthropiques semble modéré par rapport aux gaz à effet de serre, il y est bien supérieur dans les zones urbaines à fortes concentrations particulières.

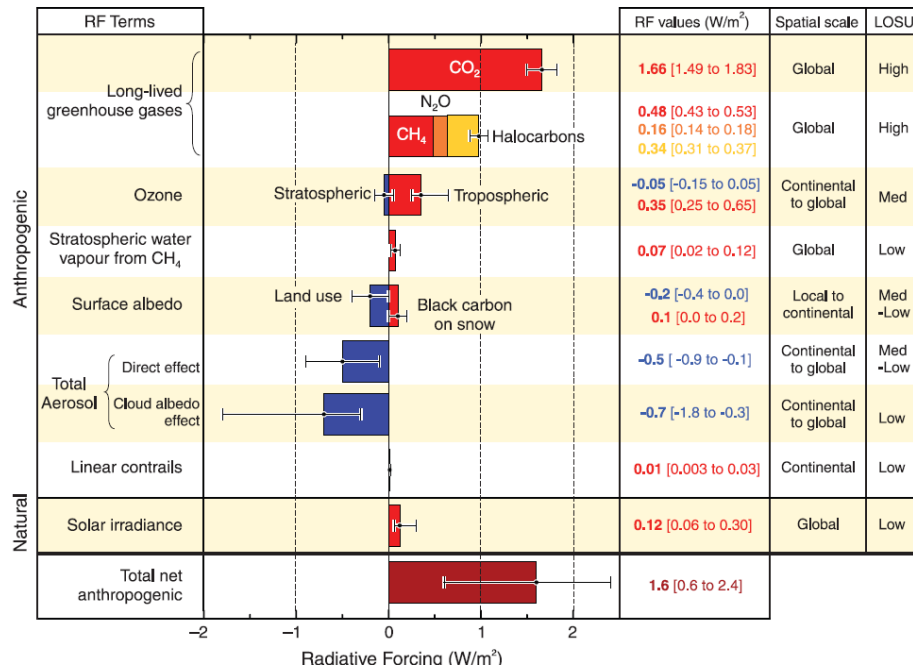


Fig. 1.3 : Ensemble des principaux éléments du forçage radiatif additionnel contribuant au changement climatique. Tous ces forçages radiatifs résultent d'un ou de plusieurs facteurs qui affectent le climat et sont associés à des activités humaines ou des processus naturels. Les valeurs représentent les forçages en 2005 par rapport au début de l'ère industrielle (environ 1750). Les activités humaines sont responsables de changements importants pour les gaz à longue durée de vie, l'ozone, la vapeur d'eau, l'albédo de surface, les aérosols et des panaches d'avions. L'unique augmentation d'importance du forçage d'origine naturelle entre 1750 et 2005 est liée à l'existence solaire. Des forçages positifs conduisent au réchauffement du climat et des forçages négatifs engendrent un refroidissement. La fine ligne noire associée à chaque barre colorée représente la plage d'incertitude pour la valeur correspondante. Les valeurs fournissent le forçage radiatif global moyen (meilleure estimation et plages d'incertitude à 5 et 95 %), ainsi que le domaine géographique typique associé au forçage (échelle spatiale) et le niveau de connaissance scientifique estimé (LOSU). Les aérosols émis lors d'éruptions volcaniques contribuent à un terme de refroidissement épisodique additionnel quelques années après l'éruption. La plage indiquée pour les panaches d'avions linéaires n'inclut pas d'autres effets éventuels de l'aviation sur la couverture nuageuse.

## 1.3.2.1 Effet radiatif direct

A l'échelle globale, les aérosols agissent sur le climat de manière directe au même titre que les gaz à effet de serre (McCormick and Ludwig, 1967 ; Hansen et al., 2000 ; Ramanathan et

al., 2001). Les aérosols rediffusent dans toutes les directions et éventuellement absorbent, suivant leurs propriétés optiques, le rayonnement solaire qu'ils interceptent (Fig. 1.4). C'est l'effet parasol encore appelé « effet direct ». L'intensité de la diffusion et de l'absorption dépend des caractéristiques physiques et chimiques des aérosols et de la longueur d'onde du rayonnement. La diffusion est l'effet majeur pour le rayonnement solaire, en particulier dans le cas des aérosols liés à la pollution; elle joue un rôle moins important pour le rayonnement tellurique. La rétrodiffusion du rayonnement vers l'espace induit en moyenne globale une diminution nette de l'énergie incidente à la surface et donc en général un forçage radiatif négatif qui se traduit par un refroidissement à la surface de la Terre d'environ 25 à 50 % (IPCC, 2007 ; Kiehl et Briegleb, 1993 ; Charlson et al., 1992), sauf si les aérosols sont absorbants et la surface brillante. En effet, ce processus dépend des capacités d'absorption de l'aérosol mais aussi de l'albédo planétaire qui est la fraction de rayonnement solaire directement renvoyé vers l'espace (par réflexion ou par diffusion) par la surface de la Terre ou par l'atmosphère via les nuages, les molécules gazeuses et les particules. Contrairement au cas de réflexion, l'absorption tend à diminuer l'albédo car elle permet à une plus grande partie du rayonnement solaire d'atteindre la surface terrestre (Ackerman et al., 2000). Dans le cas d'aérosols absorbants avec une réflectance de surface importante (au-dessus des surfaces désertiques notamment), l'effet d'absorption peut dominer par rapport à l'effet de réflexion et le forçage radiatif induit sera positif (Haywood and Shine, 1995; Haywood and Boucher, 2000). L'effet radiatif dans l'infrarouge thermique est moindre mais non négligeable : le rayonnement infrarouge émis par la surface et l'atmosphère est absorbé et réémis (et diffusé) par les aérosols, une partie est donc piégée par effet de serre (Sokolik et al., 1998 ; Vogelmann et al., 2003 ; Reddy et al., 2005). Le forçage direct est estimé actuellement à  $-0,5 \text{ W.m}^{-2}$  (Fig. 1.3).

### ***1.3.2.2 Effet radiatif semi-direct***

L'absorption par les aérosols, notamment les carbones suies dans les spectres ultraviolet et visible, provoque aussi un réchauffement au niveau des couches atmosphériques où ils se trouvent et donc modifie l'équilibre vertical de la basse et moyenne troposphère (e.g. Léon et al., 2002). Cet échauffement peut être suffisamment important pour provoquer l'évaporation des nuages éventuellement présents (Fig. 1.4). Dans le cas où l'absorption se produit dans des zones claires, il peut y avoir inhibition de la formation nuageuse (Hansen et al. 1997 ; Ackerman et al., 2000). Cet effet dit semi-direct, puisque sa cause est l'effet direct des aérosols, exerce donc un forçage positif par diminution de l'albédo planétaire. Ce dernier forçage pourrait ne pas être négligeable et pourrait compenser de 60% l'effet direct (Ramanathan et al., 2001). De plus, en favorisant les processus de catalyse hétérogène, les aérosols sont également susceptibles de modifier les processus chimiques dans l'atmosphère.

### ***1.3.2.3 Effet radiatif indirect***

L'impact des aérosols, notamment des aérosols hydrophiles (sulfates, nitrates, chlorures, ...), sur le climat est également indirect du fait de leur rôle en tant que noyaux de condensation (CCN) qui initient la nucléation des gouttes d'eau et des cristaux de glace, menant à la formation des nuages (Twomey, 1974, 1977 ; Twomey et al., 1984 ; Arking, 1991). La multiplication des surfaces disponibles pour la condensation de la vapeur d'eau saturante modifie les propriétés optiques des nuages en modifiant la taille et le nombre des gouttelettes d'eau qui les forment (Fig. 1.4). Pour un contenu en vapeur d'eau donné, l'augmentation du nombre de noyaux de condensation provoque une augmentation du nombre de gouttes mais



# 1. Introduction générale

une diminution de leur taille moyenne. Ce nombre de gouttes est dix fois plus fort au-dessus des zones de fortes émissions qu'au-dessus des zones de faibles émissions.

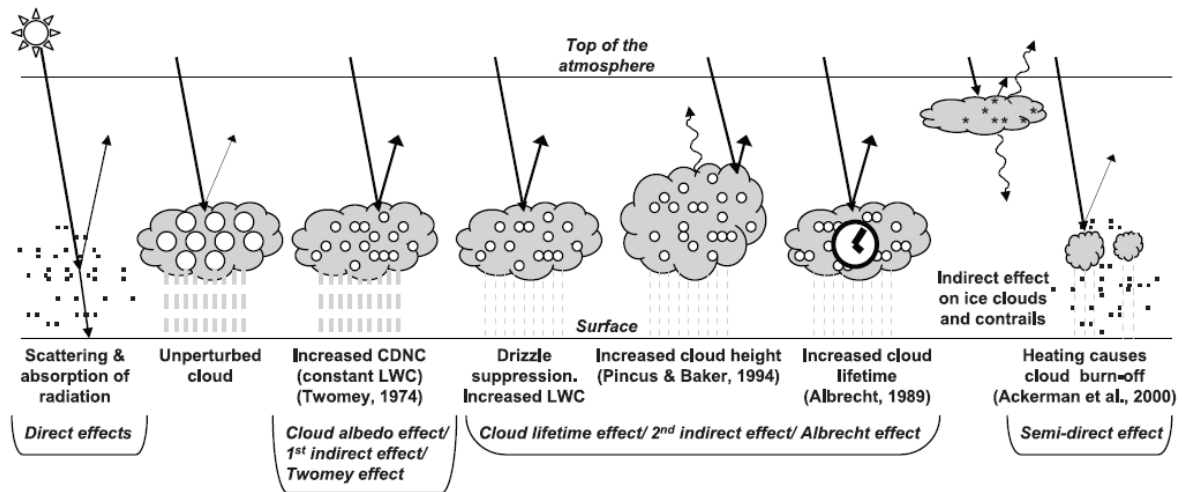


Fig. 1.4 : Schéma présentant les divers mécanismes radiatifs associés aux effets des nuages qui ont été identifiés comme significatifs en liaison avec des aérosols (d'après Haywood and Boucher (2000)). Les petits points noirs représentent des particules, les cercles blancs plus gros des gouttelettes nuageuses. Les lignes en trait plein représentent le rayonnement solaire incident et réfléchi, et les lignes ondulées le rayonnement terrestre. Les cercles blancs indiquent la concentration en nombre de gouttelettes nuageuses (CDNC). Un nuage non perturbé contient de plus larges gouttes nuageuses car seuls les aérosols naturels sont disponibles pour servir de noyaux de condensation (CCN), tandis qu'un nuage perturbé contient davantage de petites gouttes nuageuses étant donné que les aérosols naturels et anthropiques sont disponibles pour servir de CCN. Les tirets gris verticaux représentent les précipitations, et LWC se rapporte au contenu en eau liquide.

Le premier effet indirect (« effet Twomey ») qui en résulte est une augmentation de la couverture nuageuse : le changement de microstructure, avec une concentration en aérosols plus élevée et des gouttelettes bien plus fines, a pour effet de rendre le nuage plus diffusant aux courtes longueurs d'onde (rayonnement solaire) ce qui augmente l'albédo lié aux nuages (Twomey, 1974, 1977 ; Coakley et al., 1987 ; Kim and Cess, 1993), et donc diminue l'énergie entrant dans le système Terre-atmosphère. Il faut également noter que les particules de poussière les plus grosses sont d'efficaces noyaux glaçogènes (Chen et al., 1998 ; Pruppacher et Klett, 1997), affectant la formation et les propriétés des nuages de glace dans la partie haute de la troposphère. L'interaction entre un cirrus et les particules de carbone suie émises par les avions (ou les particules minérales insolubles lorsqu'elles sont disponibles aux hautes altitudes) a comme conséquence une augmentation de l'albédo du nuage (Jensen and Toon, 1997).

Le deuxième effet indirect (« effet d'Albrecht ») est dû au fait que cette diminution de la taille des gouttes d'eau retarde la précipitation des nuages (diminution de la fréquence et de l'efficacité des événements pluvieux, Rosenfeld et al. (2002)), ce qui modifie la teneur en eau liquide et l'épaisseur du nuage (Pincus and Baker, 1994). La durée de vie du nuage est ainsi augmentée (Albrecht, 1989). Ce second effet indirect a pour conséquence une intensification du premier effet indirect et une modification de tout le cycle hydrologique (Rosenfeld, 1999, 2000). Les incertitudes restent nombreuses sur les conséquences radiatives de cette longévité accrue des nuages. De façon encore très incertaine, la perturbation radiative liée au deuxième

effet indirect aurait un signe variant selon l'altitude du nuage et pourrait avoir la même ampleur que celle associée au premier effet.

Ces deux effets indirects induisent une augmentation de la réflexion du rayonnement solaire vers l'espace et sont associés à un forçage radiatif négatif. Les évaluations des effets radiatifs indirects des aérosols varient énormément. La combinaison des deux effets indirects se situe entre  $-1,4$  et  $-4,8$   $\text{W/m}^2$  (Lohmann and Feichter, 2005) pour les sulfates. Jones et al. (1994) ont évalué l'effet indirect à  $-1,3$   $\text{W/m}^2$ , tandis que Kaufman and Chou (1993) ont proposé une valeur de  $-0,45$   $\text{W/m}^2$ . L'effet indirect à l'échelle globale bien que difficilement quantifié malgré des observations récentes (Bréon et al., 2002), est estimé à des valeurs comparables au forçage direct.

### 1.4 Enjeux scientifiques

---

Bien que de nombreux travaux aient été effectués et que des progrès significatifs aient été accomplis dans le domaine des prévisions climatiques, il reste encore de nombreuses sources d'incertitudes, tel que le démontrent les barres d'erreurs concernant les valeurs de forçage radiatif additionnel correspondant aux aérosols, données dans la Fig. 1.3. Le forçage direct par les aérosols anthropiques se situe entre  $-0.1$  et  $-0.9$   $\text{Wm}^{-2}$ . Les estimations pour le forçage indirect sont entre  $-0.3$  et  $-1.8$   $\text{Wm}^{-2}$ . Ces valeurs sont comparables en valeur absolue mais opposées en signe à celles du forçage radiatif dû aux gaz à effet de serre (entre  $+2.3$  et  $+2.9$   $\text{Wm}^{-2}$ ). L'effet radiatif des aérosols dépend principalement et de manière significative du nombre de particules, de leur taille, de leur composition chimique (état de mélange interne et externe) et de leur forme. Les trois premiers paramètres sont respectivement représentés par leur distribution en taille et leur indice complexe de réfraction. La variabilité des comportements radiatifs de l'aérosol va donc dépendre des variabilités combinées de sa distribution en taille et son indice de réfraction, associées à son caractère hygroscopique. Il existe donc un réel intérêt à l'étude de ces particules, avec pour finalité de caractériser leurs propriétés macrophysiques (sources, localisation spatiale, transport, ...) et microphysiques, ainsi que leur impact radiatif. A cause du manque de données d'observation, la plupart des évaluations du forçage radiatif dû aux aérosols troposphériques sont basées sur des études théoriques. La dispersion des résultats indique clairement les besoins en données d'observation sur les propriétés chimiques et physiques des aérosols, et la nécessité d'améliorer les calculs de leur distribution. La détermination de ces paramètres repose nécessairement sur des campagnes de mesures in situ qui permettent d'améliorer la connaissance des processus, d'initialiser les algorithmes de traitement d'observations obtenues à partir de plateformes spatiales et de valider les résultats de modèles. De telles campagnes de mesures sont organisées dans les régions sources ou en périphérie de régions sources afin d'avancer dans la connaissance des aérosols et des processus chimiques, microphysiques et optiques liés à ces particules, comme par exemple INDOEX (INDian Ocean EXperiment) en 1997 (e.g., Ramanathan et al., 2001 ; Chazette, 2003), ACE-2 (Aerosol Characterization Experiment-2) en 1997 (e.g. Flamant et al., 2000), ACE-ASIA (Aerosol Characterization Experiments) en 2001 (e.g. Huebert et al., 2003) ou AMMA (African Multidisciplinary Monsoon Analysis) en 2006 (e.g. Chazette et al., 2007a).

En terme de pollution atmosphérique, il est également primordial de mieux quantifier les incertitudes liées aux aérosols et de les réduire en améliorant la qualité des ensembles de

données d'observation tout en couplant celles-ci à des modélisations adaptées : modèle Meso-NH (Grini et al., 2006), modèle SIREAM (Tombette and Sportisse, 2007) ou à l'échelle globale (Hauglustaine, et al., 1998). En dépit de l'essor considérable pris par l'étude des polluants particulaires ces dix dernières années, nos connaissances sur la pollution urbaine concernent, encore aujourd'hui, davantage les aspects photochimiques que particulaires. Les aérosols ne sont pas en effet constitués par une entité chimique bien définie, mais un mélange hétérogène dont chaque élément est caractérisé par un état, une composition chimique, une granulométrie et une dynamique d'évolution dans l'atmosphère. Ainsi, la caractérisation des aérosols en concentrations massiques ( $PM_{2.5}$  ou  $PM_{10}$ ) n'est pas totalement satisfaisante car cette approche n'est pas sensible aux très fines particules dont la taille est située en dessous de  $0.1\ \mu m$  (impact sanitaire), qui représentent plus de 90% du nombre total de particules en atmosphère urbaine mais qui sont généralement négligeables en masse. La connaissance de ces particules, de leurs mécanismes de formation et d'évolution, ainsi que leurs interactions et effets sur l'environnement sont encore mal connus et nécessitent de la part de la communauté scientifique des efforts de recherche importants. Là encore, des campagnes de mesure sont mises en place pour réduire les incertitudes, comme par exemple ESQUIF (Etude et Simulation de la Qualité de l'air en Ile-de-France) en 2000 (Menut, et al., 2000 ; Chazette et al., 2005b), ESCOMPTE (Expérience sur Site pour Contraindre les Modèles de Pollution atmosphérique et de Transport d'Emissions) en 2001 (Mestayer et al., 2005), POVA (Pollution dans les Vallées Alpines) en 2002 (e.g. Chazette et al., 2005a) ou LISAIR (Lidar pour la Surveillance de l'AIR) en 2005 (Raut et Chazette, 2007 ; Chazette, 2007b).

Ainsi, tant en terme d'impact radiatif que de conséquences sur la pollution, des questions non résolues apparaissent et des directions primordiales à explorer se dessinent pour avancer dans la connaissance de la caractérisation des aérosols de pollution. L'objectif de ce travail de thèse est d'explorer certaines de ces directions. Elles concernent principalement la structure verticale des différentes couches d'aérosols, leur structure interne microphysique et chimique, leurs propriétés optiques, notamment leur indice complexe de réfraction et leur coefficient d'extinction, leur contribution au forçage radiatif, notamment le rôle des différentes couches séparées ou mélangées. L'approche développée s'appuie intensivement sur l'approche expérimentale : les mesures effectuées pendant les campagnes de terrain LISAIR, ESQUIF et AMMA ont été synthétisées sous un angle nouveau afin de mettre en évidence la complémentarité des observations de télédétection active et passive avec des données in situ et d'atteindre des caractéristiques nouvelles des aérosols.

## 1.5 Organisation du manuscrit

---

### 1.5.1 Objectifs de la thèse

Les travaux que j'ai menés durant ma thèse ont pour principal objectif scientifique une meilleure caractérisation des propriétés optiques des aérosols atmosphériques et de leurs évolutions car elles constituent des pré requis indispensables pour améliorer la connaissance que nous avons de leurs impacts sur les deux thématiques à caractère sociétal que sont la qualité de l'air et le climat. Ce travail a été conduit selon deux étapes principales : (i) la définition d'une méthodologie originale d'analyse couplant des observations de télédétection active et passive à l'observation in situ, et (ii) la mise en place d'applications sur la qualité de l'air et le bilan radiatif du système couplé Terre-Atmosphère.



Il s'agit de pouvoir suivre l'évolution de l'aérosol naturel ou anthropique dans le temps et dans l'espace. Les observations in situ réalisées au sol permettent efficacement par des études de fermeture de caractériser les propriétés de l'aérosol en surface. Le lidar apporte un complément incontournable pour évaluer la variabilité horizontale et surtout verticale de ces propriétés microphysiques et optiques dans la couche limite atmosphérique (CLA) (e.g. Dupont et al., 1994 ; Menut et al., 1999 ; Raut et Chazette, 2007 ; Chazette, 2007b). Les méthodes de fermeture originales développées dans cette thèse se sont essentiellement axées sur la détermination de l'indice complexe de réfraction et de l'albédo de simple diffusion des aérosols présents dans la colonne d'air. Ce sont généralement des paramètres difficiles à évaluer en conditions réelles. Les données lidar obtenues durant les programmes LISAIR et ESQUIF ont été exploitées, intégrant des études de processus sur le rôle de l'aérosol dans la photochimie en milieu urbanisé (région parisienne). Cela a permis la valorisation de l'utilisation d'un système lidar dédié à l'étude de la qualité de l'air en environnement urbain. Je me suis intéressé à la variabilité temporelle de cet indice et à son évolution en fonction de l'humidité relative de l'air ambiant, de l'arrivée éventuelle de masses d'air transfrontalières et de l'état de mélange des particules. Ces travaux méthodologiques ont pu être appliqués aux aérosols mesurés lors de la campagne internationale AMMA. Ils ont ainsi permis d'identifier des signatures optiques et structurales très contrastées entre les particules issues de feux de biomasse et celles issus d'épisodes de soulèvement d'aérosols désertiques au-dessus du Sahara. Afin de mieux comprendre certains processus, il a été judicieux d'associer les observations à la modélisation de processus photochimiques et radiatifs.

## 1.5.2 Plan de la thèse

Ce manuscrit est construit essentiellement sur les résultats recensés dans trois articles publiés (Raut and Chazette, 2007 ; 2008a) ou soumis à publication (Raut and Chazette, 2008b) dans des revues scientifiques à comité de lecture. Certains résultats supplémentaires présentés font référence à d'autres travaux auxquels j'ai pu participer : Kim et al. (2008), Chazette et al. (2008). Enfin, deux articles basés sur la caractérisation des aérosols en environnement souterrain (gare SNCF) et dont les principaux résultats s'appuient sur les méthodologies développées dans cette thèse sont présentés en annexe : Raut et al. (2008a ; 2008b).

Le Chapitre 2 présente les paramètres qui définissent les aérosols et l'impact de leurs propriétés microphysiques sur leurs propriétés optiques. Il approfondit la notion d'interaction entre les aérosols et le rayonnement. Les équations qui régissent cette physique sont présentées de façon à identifier les paramètres clés qui devront être considérés pour la télédétection des aérosols et pour le calcul de leur forçage radiatif.

Le Chapitre 3 identifie les moyens d'observation qui ont été mis en œuvre durant cette thèse. Les principes de fonctionnement des instruments et leurs incertitudes sont décrits. Une attention toute particulière est portée aux systèmes lidar à rétrodiffusion Mie qui ont été utilisés et aux paramètres qu'ils permettent de restituer.

Le Chapitre 4 s'appuie sur l'article de Raut and Chazette (2007) qui a été rédigé suite à la campagne LISAIR de mai 2005 sur Paris. Il constitue une étude sur l'aérosol anthropique en régions urbaine dans une mégalopole. Une synergie combinant instruments de télédétection active, passive et des mesures in situ au sein d'une station basée au niveau du sol a été mise en place pour étudier les propriétés optiques de l'aérosol parisien. Ces travaux pionniers ont

## 1. Introduction générale

---

permis le développement d'une méthode visant à déterminer l'indice complexe de réfraction et l'albédo de simple diffusion des aérosols présents dans la basse troposphère.

Le Chapitre 5 présente l'extension de la méthode à des mesures aéroportées réalisées lors de la campagne nationale ESQUIF 2000, afin d'obtenir pour la première fois des profils verticaux de l'indice complexe de réfraction des aérosols parisiens avec une très bonne résolution verticale (200 m). Les différences au niveau des propriétés optiques des particules sont discutées selon leur origine et leur nature (Raut and Chazette, 2008a).

Dans le Chapitre 6, des structures multicouches d'aérosols de poussières désertiques dans la couche limite et des aérosols provenant de feux de biomasse dans la troposphère libre sont étudiées lors de la campagne AMMA en janvier – février 2006 (SOP-0) au Niger (Raut and Chazette, 2008b). L'application de la méthodologie développée précédemment a permis de déterminer les taux d'échauffement radiatif dus aux différents types d'aérosols présents. Les impacts radiatifs relatifs respectifs des couches d'aérosol ont été évalués et des études de sensibilité ont été conduites.

Enfin, différentes conclusions sont tirées de cette thèse, et les principales perspectives de recherche ouvertes par ce travail sont présentées.

## Chapitre 2

---

# 2 L'aérosol : des propriétés microphysiques à l'interaction avec le rayonnement

## 2.1 Introduction

---

Les incertitudes liées aux aérosols sont très importantes (Chapitre 1). En effet, les aérosols ont une très courte durée de vie, de quelques heures à quelques jours surtout dans la basse troposphère, et leur nature dépend de sources de production diverses. Ils varient alors rapidement dans le temps et dans l'espace, leur répartition horizontale et dans la colonne d'air est donc très hétérogène ce qui rend leur étude compliquée. L'aérosol a un impact encore mal connu sur le bilan radiatif du système Terre/Atmosphère via ses interactions avec les rayonnements solaire et tellurique. Il est aussi l'une des composantes importantes à surveiller pour la pollution en milieu urbain et périurbain. L'effet environnemental régionalisé des aérosols influence également considérablement l'échelle globale (IPCC 2007). Ainsi, tant sur l'aspect climatique qu'en terme de pollution atmosphérique, il est plus que nécessaire de mieux quantifier les incertitudes liées aux aérosols et de les réduire en améliorant la qualité des ensembles de données d'observation. On détaille dans ce chapitre l'ensemble des paramètres pertinents qui pourront être restitués par la mesure pour les impacts climatiques et sanitaires de l'aérosol. Les méthodes de résolution de l'équation de transfert radiatif sont aussi décrites à partir des lois d'interaction entre une particule et le rayonnement incident.

## 2.2 Propriétés microphysiques des aérosols

---

### 2.2.1 Origine et composition chimique

La variabilité des sources d'émission et des processus de formation et d'évolution des particules dans l'atmosphère conduit à une grande variété de compositions et de types d'aérosols dans le temps et l'espace. Selon leur origine, les aérosols sont classés en deux familles principales, les sources naturelles et les sources anthropiques. La source naturelle représente environ 80-95% de la masse des aérosols émis dans l'atmosphère c'est-à-dire environ 3000 millions de tonnes par an (Seinfeld and Pandis, 1998). Les sources naturelles sont constituées principalement d'aérosols minéraux (35-50%) et de sels marins (35-55%). Les sources anthropiques (5-10% des émissions totales de particules) sont issues principalement des rejets industriels (fumées, poussières,...), des trafics routier et aérien, des

combustions (usines, secteur résidentiel,...), de l'incinération des ordures, des chantiers de construction ou encore de l'agriculture. Cette moindre importance numéraire des émissions anthropiques par rapport aux sources naturelles ne doit pas masquer leur rôle du fait de tailles bien plus faibles, favorables à l'extinction du rayonnement. A cela s'ajoute, comme on le verra dans la suite, la différence de propriétés optiques induite par la proportion de suie au sein de la particule. Les principaux types d'aérosols naturels ou anthropiques qui peuvent être rencontrés dans l'atmosphère terrestre sont donnés dans le Tableau 2.1.

Une autre classification consiste à différencier aérosols primaires et secondaires (Tableau 2.1). On parle d'aérosols primaires lorsque ce sont des particules émises directement dans l'atmosphère sous forme solide ou liquide comme par exemple les aérosols minéraux résultant de l'érosion des sols et de la resuspension, les embruns marins et les cendres volcaniques. Le carbone suie est également émis directement par les processus de combustion de la biomasse ou des fuels fossiles. A l'inverse, les aérosols secondaires résultent de réactions chimiques en phase gazeuse (oxydation par l'ozone ou les radicaux hydroxyles) par un processus de conversion gaz - particules via les phénomènes de nucléation, condensation ou production en phase aqueuse. Les gaz précurseurs proviennent essentiellement de processus de combustion et de l'émission naturelle du sol ou suite à l'utilisation d'engrais. Ainsi, une bonne partie des sulfates, des nitrates (composés inorganiques de même que l'ammonium, le chlore, le sodium ou le calcium), certains métaux comme le magnésium, l'aluminium, le fer et une partie des particules organiques présentes dans l'atmosphère sont des aérosols secondaires (carbone organique résultant de la condensation, de l'oxydation des composés organiques volatiles ou de la combustion de biomasse).

Tableau 2.1 : Principales sources d'aérosols primaires et secondaires dans l'atmosphère et leurs flux d'émission moyens annuels d'après Kiehl and Rodhe (1995) et Seinfeld and Pandis (1998), IPCC (1995), IPCC (2001) (Source : Chazette (2002b)).

Source	Tg (10 <sup>12</sup> g)/an
<b>Naturelle</b>	
<i><b>Aérosols de type primaire</b></i>	
Poussières désertiques	≈ 1500/1500/2150
Sels de Mer	≈ 1300/1300/3340
Poussières volcaniques	≈ 30/33/33
Débris biogéniques	≈ 50/56
Carbone suie (produit par la combustion de la biomasse)	≈ 6-9
<i><b>Aérosols de type secondaire</b></i>	
Sulfates produits par les gaz biogéniques	≈ 130/90/57
Sulfates produits par le SO <sub>2</sub> volcanique	≈ 20/12/21
Nitrates principalement produits par les oxydes d'azote	≈ 30/22/4
Combustion de la biomasse (organiques, nitrates, sulfates)	≈ 90
Combustion de la biomasse (carbone organique seul)	≈ 45-80
Carbone organique produit par les gaz biogéniques (COV)	5-12/16
<b>Anthropique</b>	
<i><b>Aérosols de type primaire</b></i>	
Poussières industrielles	≈ 100/100/100-200
Carbone Suie	≈ 10/13/6-8
<i><b>Aérosols de type secondaire</b></i>	
Carbone organique produit par la combustion des fuels fossiles	≈ 10/60/10-30
Sulfates produit par le SO <sub>2</sub>	≈ 190/140/122
Nitrates principalement produit par les oxydes d'azote	≈ 50/40/14

Les travaux conduits dans cette thèse sont majoritairement axés sur les propriétés optiques des aérosols, notamment leur indice de réfraction, et sur l'interaction avec le rayonnement solaire.

Il convient alors de préciser qu'une bonne évaluation des propriétés optiques de l'aérosol atmosphérique ne nécessite pas de connaître la spéciation complète de l'aérosol, en particulier celle de l'aérosol organique. Avec la même approche que celle utilisée dans l'article de Chazette and Liousse (2001), l'aérosol sera partitionné, sauf mention contraire (article en annexe de Raut et al. (2008a)), en cinq grandes classes que sont la partie organique (POM déduit du carbone organique OC), les particules solubles autres qu'organiques (WS), le carbone suie (BC), les poussières (Dust) et les sels de mer (SS).

- Les aérosols minéraux sont la première source mondiale d'aérosols. Ils sont constitués de particules d'argile, de quartz, de feldspath, de calcite, etc. et parfois de sels provenant de lacs asséchés. Une fois soulevées par le vent, les grosses particules retombent rapidement au sol alors que les plus petites forment un nuage sec qui peut s'élever jusqu'à 4-6 km d'altitude et s'étendre sur des milliers de kilomètres. C'est ainsi qu'on retrouve en Europe ou en Amérique du Sud des particules en provenance du continent africain.

- Les aérosols marins sont formés par évaporation des gouttelettes d'eau à la surface des océans mais aussi par éclatement de bulles dû au déferlement des vagues et aux courants marins. Outre le dioxyde de carbone, ces bulles d'un diamètre de l'ordre du millimètre libèrent des dizaines de particules de sel microscopiques (sodium, chlore, soufre) qui ne se brisent pas et participent à la formation de brumes.

- Les aérosols solubles dans l'eau en augmentation au cours de la période industrielle (sulfates, nitrates, substances organiques) sont généralement concentrés autour des régions industrielles.

- Les aérosols de combustion sont présents dans les régions tropicales et boréales en raison de nombreux feux de forêt. Par exemple les brûlis de la végétation intertropicale en période sèche occasionnent chaque année des brumes sèches qui disparaissent une fois les pluies revenues. Ils sont aussi produits par combustion interne dans les moteurs (circulation automobile) et par combustion industrielle.

- Les aérosols de sulfates sont majoritairement d'origine volcanique : le dioxyde de soufre  $\text{SO}_2$  émis lors des éruptions volcaniques produit ces fines particules d'acide sulfurique ( $\text{SO}_2 + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{H}_2\text{SO}_4$ ) qui s'entourent de glace et forment avec les cendres un écran empêchant le rayonnement solaire d'arriver jusqu'au sol. Ils ne sont pas considérés dans ce travail de thèse car ils sont majoritairement concentrés dans la stratosphère. Il faut y ajouter les émissions industrielles dans la troposphère :  $\text{SO}_2$  est en effet un polluant réglementé. Avec la diminution du soufre dans l'essence depuis 1994 (limitations européennes à 50 ppm en 2005 puis 10 ppm en 2009 dans les carburants diesel), la quantité de sulfates a également diminué dans les grandes agglomérations comme Paris. Néanmoins, beaucoup de rejets sont encore liés à l'activité industrielle. Les sulfates sont pris en compte dans la partie WS.

Collecter ces constituants de base et mesurer leurs propriétés physico-chimiques (taille des particules, indice de réfraction) n'est pas une mince affaire car ces dernières varient parfois fortement pour un même constituant.

### 2.2.2 Distribution granulométrique

La diversité des sources et des processus mécaniques et chimiques intervenant pour générer une population de particules a pour conséquence une multitude de morphologies et de tailles d'aérosols. La taille des particules n'est donc pas unique mais s'étale sur une gamme de « rayons » de plusieurs ordres de grandeurs dont la répartition en nombre (ou en surface, en masse ou en volume) est appelée distribution en taille. Si la forme de la particule est

complexe, le « rayon » peut désigner par exemple la longueur du plus grand axe ou le rapport du volume sur l'aire. Il est important de connaître la distribution en taille car les effets des particules sur les processus chimiques et radiatifs de la planète en dépendent : la sensibilité des propriétés optiques à la distribution en taille complexifie en effet la relation entre l'émission des aérosols et leur forçage radiatif additionnel. Une part importante des incertitudes sur l'estimation du forçage radiatif provient d'une méconnaissance des processus de modification de la nature chimique et de la distribution en taille survenant au cours du vieillissement de l'aérosol. D'une manière générale, plus les particules seront de taille importante, plus leur sédimentation sera rapide et donc leur temps de séjour dans l'atmosphère sera court.

Afin de représenter la distribution en taille, différentes lois statistiques ont été proposées et testées (Lenoble, 1993). Les distributions lognormales du fait de leurs propriétés mathématiques (fonctions simples de classe  $C_\infty$ ), sont ainsi largement utilisées pour la modélisation de la distribution en taille des aérosols atmosphériques (Aitchison and Brown, 1957) car ce sont celles qui ont été déterminées comme les plus proches des distributions observées dans la nature (Hinds, 1982; Giorgi, 1988; Jaenicke, 1988). Schwartz (1995) et Lacis and Mishchenko (1995) recommandent d'utiliser plusieurs modes de faible variance pour représenter la distribution en taille de chaque type d'aérosols plutôt que d'utiliser une distribution monomodale très large. En effet, pour des valeurs d'écart-type supérieures à 3, apparaît une dépendance artificielle des propriétés optiques à des particules de rayons de 10 à 100  $\mu\text{m}$  qui n'ont pas de réalité physique mais qui sont implicitement induites par la queue de la distribution du côté des larges particules. Souvent les distributions sont d'ailleurs tronquées à des valeurs arbitraires (D'Almeida and Schütz, 1983). Selon la proximité ou l'éloignement de la source et en fonction de processus physico-chimique de transformations (ou « vieillissement ») qu'aura pu subir l'aérosol durant son transport, sa distribution en taille pourra présenter un, deux, voire trois modes spectraux. Trois modes principaux correspondant à des maxima locaux de la distribution en taille ( $p=3$ ) sont généralement observés dans la nature, mais les intervalles encadrant ces modes ne sont pas rigoureusement fixés dans la littérature.

D'après les classifications à partir des granulométries en masse établies par Seinfeld and Pandis (1998) inspirées des travaux de Whitby and Cantrell (1976), les particules ayant des rayons  $> 1 \mu\text{m}$  sont considérées comme étant dans le mode grossier, celles ayant des rayons  $< 1 \mu\text{m}$  sont situées dans le mode fin, lui-même subdivisé en mode de nucléation (appelé parfois mode de nucléation d'Aitken) pour les rayons  $< 0.05 \mu\text{m}$  et en mode d'accumulation pour les rayons compris entre 0.05  $\mu\text{m}$  et 1  $\mu\text{m}$ . Ces différentes classifications viennent principalement de la différence entre les processus à l'origine de la formation des particules.

Les particules du mode de nucléation proviennent essentiellement des processus de conversion gaz/particules à température ambiante ou encore lors du refroidissement des gaz lors de processus de combustion. Il s'agit donc en majorité des particules secondaires produites par condensation homogène ou hétérogène, ou d'agrégats de carbone suie issus de la combustion (feux de forêt et fuels fossiles). C'est le mode qui domine la distribution en nombre mais leur petite taille ne leur permet d'avoir qu'une contribution massique et optique assez faible. Ces particules primaires ont une très courte durée de vie car celles-ci grandissent rapidement pour atteindre le mode d'accumulation (Whitby, 1978). En effet, ces très fines particules primaires peuvent croître soit par condensation de gaz à faible vapeur saturante, soit par coagulation entre elles ou avec des particules de plus grosse taille lorsque celles-ci rentrent en contact par diffusion brownienne.

## 2. Des propriétés microphysiques à l'interaction avec le rayonnement

Le mode d'accumulation comprend des particules secondaires générées par condensation hétérogène mais aussi des particules issues de l'agrégation par coagulation des particules du mode de nucléation, ou encore des particules issues de la ré-évaporation de gouttelettes. La coagulation est facilitée car la dimension propre de ces particules est de l'ordre de grandeur de leur libre parcours moyen, distance sous laquelle les particules accroissent considérablement leur probabilité de collision entre elles et donc leur propension à s'agglutiner les unes aux autres. Les processus de coagulation menant à l'échange entre le mode d'Aitken et ceux d'accumulation sont décrits en détail par Twomey (1977). Ce mode contient aussi le mode fin des aérosols de sels de mer et des aérosols minéraux. Ces particules ont une durée de vie beaucoup plus importante que les précédentes et ont des effets notables sur le bilan radiatif de l'atmosphère, sur la formation des nuages ainsi que sur la santé.

Le mode grossier contient surtout des particules primaires de formes très variées qui ont été produites mécaniquement : érosion des surfaces par le vent, sels de mer ou émissions par les volcans et les plantes. Il y a une probabilité très faible de passage du mode d'accumulation au mode grossier par coagulation. C'est généralement le mode qui domine la distribution en masse mais leur durée de vie est plus faible car elles sont éliminées assez rapidement par sédimentation.

Une telle séparation entre les différents modes reste théorique et peut être mise en défaut par les observations de terrain. On peut par exemple observer plusieurs modes dans une catégorie d'aérosol donnée. Le Tableau 2.2 donne pour les espèces sélectionnées en Sect. 2.2.1 les paramètres des distributions lognormales couramment utilisés dans la littérature.

Tableau 2.2 : Rayon modal et écart-type géométrique de différents types d'aérosols dont la distribution en taille est considérée lognormale (d'après Léon (2000), Mallet (2003), et Raut and Chazette (2008b)).

Type d'aérosols	Rayon modal (μm)	Ecart-type géométrique	Références
OC	0.03 – 0.06	1.7 – 2	Anderson et al., 1996
	0.03	1.8	Alfaro et al., 2002
WS	0.03	2	Boucher and Anderson, 1995
	0.0285	2	d'Almeida et al., 1991
	0.0212	2.24	Hess et al., 1998
BC	0.0118 <sup>(1)</sup> / 0.03 <sup>(2)</sup>	2.0 <sup>(1)</sup> / 1.7 <sup>(2)</sup>	IAMAP, 1986 <sup>(1)</sup>
			Berner et al., 1996 <sup>(2)</sup>
	0.03	2.0	Clarke et al., 1997
	0.035	1.54	Hitzenberg and Tohno, 2001
SS	1.17	1.46	Chiapello et al., 1999
	1.75	2.03	Hess et al., 1998
	0.209	2.03	Hess et al., 1998
	0.23	2.1	Alfaro et al., 2002
	0.20	2.0	Alfaro et al., 2002
	0.08	1.5	IPCC, 2001, Pacific Marine
	0.07	1.9	IPCC, 2001, Atlantic Marine
Dust	0.155	4	d'Almeida et al., 1991
	0.07 / 0.39 / 1.9	1.95 / 2.0 / 2.15	Hess et al., 1998
	0.05 / 0.27 / 4.0	1.65 / 2.67 / 2.40	d'Almeida et al., 1991
	0.05	2.80	IPCC, 2001, Fine Soil Dus
	0.57	1.53	Chiapello et al., 1999
	0.75	1.60	Alfaro et al., 2002
	0.30	2.00	Dulac et al., 1992a
	0.24	2.00	Dulac et al., 1992b
	0.05 / 0.30 / 1.60	1.80 / 1.60 / 1.60	Raut and Chazette, 2008b

De façon formelle, si  $dN/dr$  désigne le nombre de particules par unité de volume comprises entre les rayons  $r$  et  $r+dr$ , la distribution lognormale en nombre constituée de  $p$  modes (correspondant aux maxima) s'écrit :

$$\frac{dN}{dr} = \sum_{i=1}^p \left( N_{tot} \cdot \frac{x_i}{r \cdot \sqrt{2\pi} \cdot \ln(\sigma_i)} \exp \left( \frac{\ln^2 \left( \frac{r}{r_{mi}} \right)}{2 \cdot \ln^2(\sigma_i)} \right) \right) \quad (2.1)$$

ou encore, en utilisant  $dN/d\ln(r)$ , le nombre de particules dont le rayon est compris entre  $\ln(r)$  et  $\ln(r) + d\ln(r)$  :

$$\frac{dN}{d\ln(r)} = \sum_{i=1}^p \left( N_{tot} \cdot \frac{x_i}{\sqrt{2\pi} \cdot \ln(\sigma_i)} \exp \left( \frac{\ln^2 \left( \frac{r}{r_{mi}} \right)}{2 \cdot \ln^2(\sigma_i)} \right) \right) \quad (2.2)$$

$N_{tot}$  est le nombre total de particules par unité de volume,  $\sigma_i$  est l'écart type géométrique,  $r_{mi}$  le rayon modal et  $x_i$  le taux d'occupation du mode  $i$  tel que :

$$\sum_{i=1}^p x_i = 1 \quad (2.3)$$

C'est cette loi statistique qui sera utilisée par la suite dans ce travail.

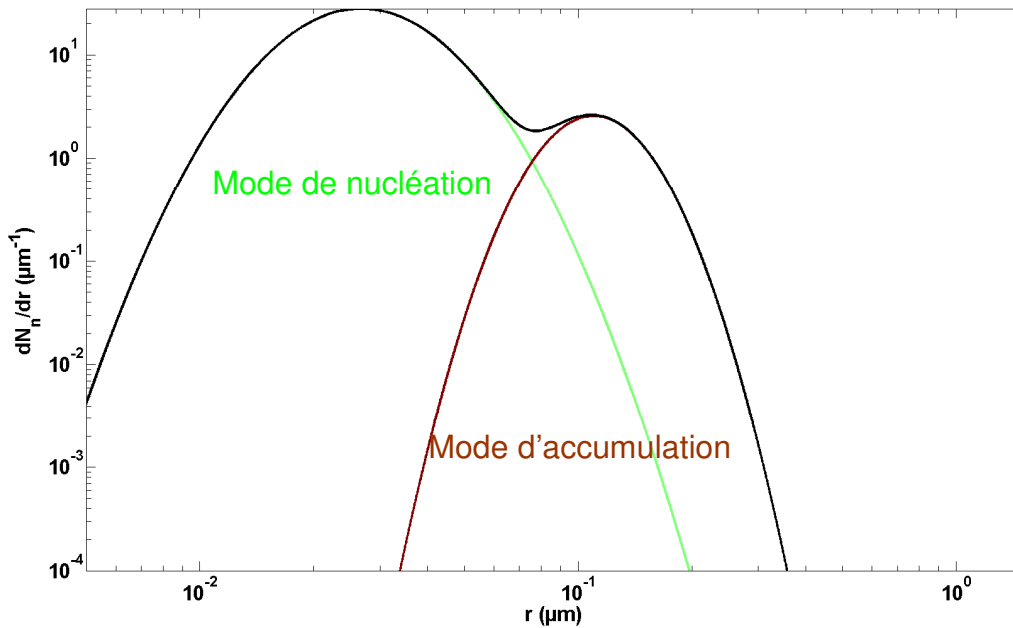


Fig. 2.1 : Représentation des deux principaux modes de la distribution en taille normalisée des aérosols parisiens  $\left( \frac{dN_n}{dr} = \frac{1}{N_{tot}} \cdot \frac{dN}{dr} \right)$  (campagnes ESQUIF en 2000 et LISAIR en 2005).



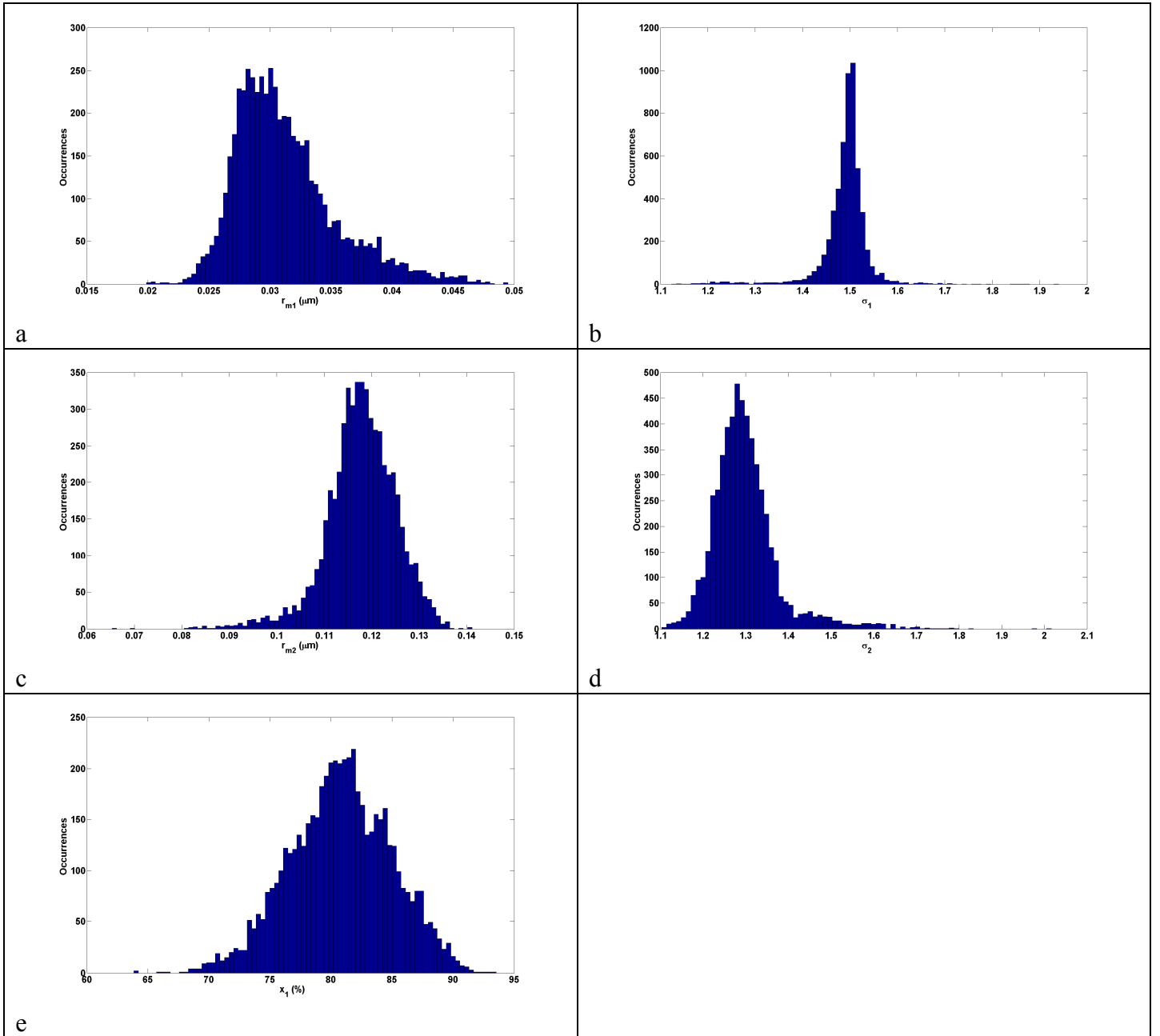


Fig. 2.2 : Variabilité naturelle des rayons modaux (a,c), écarts-types géométriques (b,d) et taux d'occupation (e) des deux principaux modes de la distribution en taille mesurée sur Paris lors de la campagne ESQUIF.

La Fig. 2.1 donne la distribution en taille typique mesurée au-dessus de la région parisienne (campagnes ESQUIF et LISAIR). Cette dernière présente deux modes principaux, que sont le mode de nucléation et le mode d'accumulation. La contribution d'un mode grossier n'a généralement pas été observée durant les périodes de mesures in situ des programmes expérimentaux. La variabilité naturelle des paramètres qui déterminent cette distribution en taille est représentée par des histogrammes en Fig. 2.2. La Fig. 2.3 enfin compare la distribution en nombre déterminée par un photomètre (Chapitre 3) à celles obtenues par la même procédure au-dessus de Banizoumbou (Niger, programme AMMA) pour des aérosols issus de feux de biomasse ou de soulèvements de poussières désertiques. Seuls les aérosols crustaux présentent clairement un mode grossier. Ce dernier est plus facilement détectable par une distribution en volume (ou en masse).

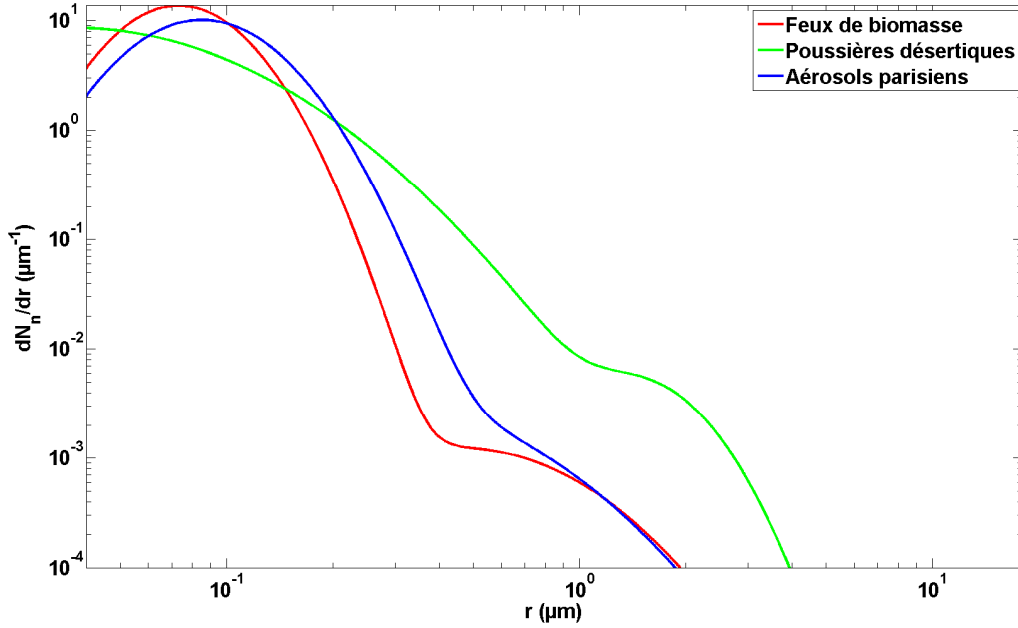


Fig. 2.3 : Distributions lognormales en nombre déterminées par des mesures photométriques au-dessus de Paris (aérosols parisiens) et de Banizoumbou (aérosols de feux de biomasse et poussières désertiques).

Il n'est en effet pas toujours adéquat de s'intéresser à la distribution du nombre de particules. La distribution de la surface convient mieux si l'on s'intéresse aux réactions chimiques dans lesquelles interviennent les aérosols. Si l'on cherche à évaluer la masse des aérosols, la distribution en volume  $V$  sera intéressante. Cette dernière s'écrit :

$$\frac{dV}{d \ln(r)} = \frac{4}{3} \cdot \pi \cdot r^3 \cdot \frac{dN}{d \ln(r)} \quad (2.4)$$

La distribution en volume est aussi une distribution lognormale avec le même écart-type. Par contre, les rayons modaux  $r_{mi}^V$  et  $r_{mi}$ , ainsi que les taux d'occupation  $x_i^V$  et  $x_i$  sont différents et sont reliés par les relations :

$$r_{mi}^V = r_{mi} \cdot \exp(3 \cdot \ln^2(\sigma_i)) \quad (2.5)$$

$$x_i^V = \frac{x_i \cdot r_{mi}^3 \cdot \exp\left(\frac{9}{2} \cdot \ln^2(\sigma_i)\right)}{\sum_{i=1}^p \left[ x_i \cdot r_{mi}^3 \cdot \exp\left(\frac{9}{2} \cdot \ln^2(\sigma_i)\right) \right]} \quad (2.6)$$

Pour la distribution en masse, on a la relation :

$$x_i^M = \frac{\rho_i \cdot x_i \cdot r_{mi}^3 \cdot \exp\left(\frac{9}{2} \cdot \ln^2(\sigma_i)\right)}{\sum_{i=1}^p \left[ \rho_i \cdot x_i \cdot r_{mi}^3 \cdot \exp\left(\frac{9}{2} \cdot \ln^2(\sigma_i)\right) \right]} \quad (2.7)$$

où  $\rho_i$  ( $\text{g} \cdot \text{cm}^{-3}$ ) est la densité des particules dans le mode  $i$ .  $r_{mi}^V$  est donc supérieur à  $r_{mi}$ , ce qui traduit le fait que la distribution du volume est décalée vers les grosses particules, qui y contribuent le plus. Il est important de souligner la difficulté expérimentale pour relier les

mesures de granulométrie en nombre et en masse (ou volume), dont les modes prépondérants diffèrent parfois de façon significative (Fig. 2.4). La sensibilité d'un instrument à la mesure de certaines classes de taille est également liée à son diamètre de coupure. Une intercomparaison entre mesures en masse et en nombre n'est possible que pour des diamètres de coupure identiques. L'étude des aérosols de pollution en région urbaine ne doit pas être trop affectée par les limitations associées aux lignes de prélèvement pour un rayon de coupure inférieur au micron (Fig. 2.4). En présence d'aérosols du mode grossier en revanche, des corrections sont nécessaires (Raut et al., 2008b). Les études de fermeture optiques réalisées dans le cadre de cette thèse requièrent une détermination précise de la distribution en taille. Il est en particulier nécessaire de bien contraindre le mode le plus efficace sur le rayonnement de manière à réduire les incertitudes sur la restitution des propriétés optiques de l'aérosol.

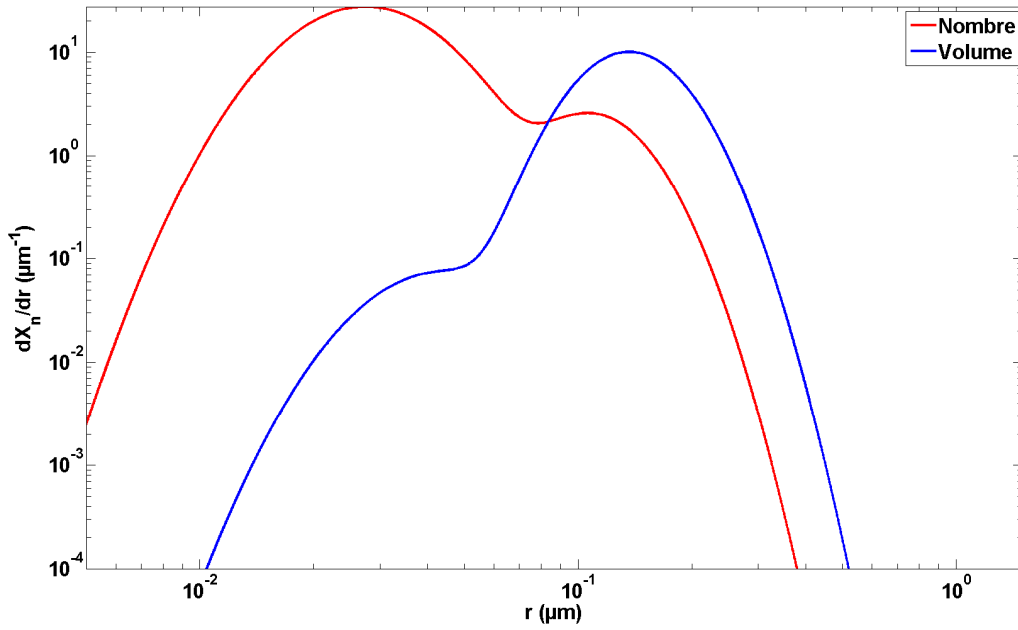


Fig. 2.4 : Distributions normalisées en nombre ( $X=N$ ) et en volume ( $X=V$ ) déterminées au cours de la campagne ESQUIF au-dessus de la région parisienne.

On définit également le rayon effectif d'une distribution par :

$$r_{eff} = \frac{\int_0^{\infty} r^3 \cdot \frac{dN}{dr} dr}{\int_0^{\infty} r^2 \cdot \frac{dN}{dr} dr} \quad (2.8)$$

et la largeur effective, ou variance effective par :

$$\sigma_{eff} = \frac{\int_0^{\infty} (r - r_{eff})^2 \cdot r^2 \cdot \frac{dN}{dr} dr}{\int_0^{\infty} r^2 \cdot \frac{dN}{dr} dr} \quad (2.9)$$

Hansen and Travis (1974) ont montré que des distributions de taille différentes mais de même rayon effectif et de même largeur effective ont des propriétés optiques de valeurs voisines. Pour une distribution lognormale monomodale, il est facile de passer de  $r_m$  à  $r_{eff}$  :

$$r_{eff} = r_m \cdot \exp\left(\frac{5}{2} \cdot \ln^2(\sigma)\right) \quad (2.10)$$

Enfin, d'autres lois statistiques sont utilisées comme types de distributions en taille. On peut citer les fonctions de Junge (Junge, 1963, Pruppacher and Klett, 1980) qui sont utilisées par classe de taille dans certaines procédures d'inversion (i.e. Nakajima et al., 1996) :

$$\frac{dN}{d \ln(r)} = C \cdot r^{-v} \quad (2.11)$$

où  $C$  représente une constante et  $3 < v < 5$ . On a aussi  $v = a + 3$ ,  $a$  désignant le coefficient d'Angström décrit dans la Sect. 2.3.3. On recense aussi les fonctions gamma modifiées (Deirmendjian, 1969) plus adaptées pour la granulométrie des cumulus ou des phénomènes de brume (Andre, 2000) :

$$\frac{dN}{d \ln(r)} = N_{tot} \cdot \delta_1 \cdot r^{\delta_2} \cdot \exp(-\delta_3 \cdot r^{\delta_4}) \quad (2.12)$$

où  $\delta_1$ ,  $\delta_2$ ,  $\delta_3$  et  $\delta_4$  sont des constantes positives.

### 2.2.3 Indice de réfraction

L'interaction de l'aérosol avec le rayonnement dépend naturellement de la taille, et de la forme de cet aérosol. La composition de l'aérosol, très variable comme indiqué à la Sect. 2.2.1, ainsi de l'état de mélange correspondant (interne ou externe) contrôlent la nature du milieu en interaction avec le rayonnement, qu'est la particule. L'influence de la chimie est alors portée par un paramètre appelé indice de réfraction. L'obtention de l'indice de réfraction est délicate et souvent passée sous silence lors des études portant sur l'aérosol atmosphérique. Sa détermination a motivé ce travail de thèse. Il ne s'agit cependant pas d'un concept abstrait ; l'indice de réfraction apparaît naturellement dans les bases de la théorie électromagnétique (van de Hulst, 1957; Bohren and Huffman, 1983). La combinaison des équations de Maxwell pour un milieu uniforme (même constante diélectrique ou permittivité  $\epsilon$  en tout point), isotrope ( $\epsilon$  indépendant de la direction de propagation), conducteur (conductivité spécifique  $\sigma$  non nulle), libre de charge (densité de charge électrique  $\rho_f$  nulle) et de perméabilité magnétique  $\mu$  conduit à une équation de Helmholtz (dite aussi équation de propagation) vérifiée par le champ électrique  $\vec{E}$  :

$$\nabla^2 \vec{E} = \epsilon \cdot \mu \cdot \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} + \mu \cdot \sigma \cdot \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} \quad (2.13)$$

Une telle équation différentielle du second ordre est aussi vérifiée par le champ magnétique. Elle peut se résoudre par séparation des variables. Parmi les solutions de cette équation, on considère les ondes polarisées planes progressives. Pour une onde plane dans le plan Oxy se propageant dans la direction des  $x$ , le champ électrique dans la direction portée par  $\vec{u}_y$  s'écrit ainsi sous la forme :

$$\vec{E}(x, t) = E_0 \cdot \exp(-i \cdot (kx - \omega t)) \vec{u}_y \quad (2.14)$$

où  $k$  représente le nombre d'onde,  $\omega$  la pulsation de l'onde et  $E_0$  l'amplitude de l'onde. La relation liant ces deux paramètres est appelée relation de dispersion :

$$k^2 = \epsilon \cdot \mu \cdot \omega^2 - i \cdot \mu \cdot \omega \cdot \sigma \quad (2.15)$$

Les ondes sont dispersives car la vitesse de groupe  $v_g$  est non nulle :

$$v_g = \frac{\partial \omega}{\partial k} \quad (2.16)$$

On préfère souvent définir les propriétés d'un milieu par rapport à leurs valeurs dans le vide. Le vide est un milieu non conducteur (diélectrique, donc nullité de  $\sigma$ ) de perméabilité  $\mu_0$  et permittivité  $\epsilon_0$  constantes. On définit alors la permittivité relative  $\epsilon_r$  et la perméabilité relative  $\mu_r$  :

$$\epsilon_r = \frac{\epsilon}{\epsilon_0} \quad (2.17)$$

$$\mu_r = \frac{\mu}{\mu_0} \quad (2.18)$$

La relation de dispersion devient alors :

$$k^2 = \omega^2 \cdot \epsilon_0 \cdot \mu_0 \cdot \left( \epsilon_r - i \cdot \frac{\sigma}{\omega \cdot \epsilon_0} \right) \quad (2.19)$$

car l'atmosphère n'étant pas magnétique, on a :

$$\mu_r = 1 \quad (2.20)$$

L'indice de réfraction  $n$  est enfin défini comme le rapport des vitesses de phase dans le vide  $c$  et dans le milieu  $v_\phi$  :

$$n = \frac{c}{v_\phi} \quad (2.21)$$

où  $v_\phi$  est donné par :

$$v_\phi = \frac{\omega}{k} \quad (2.22)$$

qui vaut dans le vide :

$$c = \frac{\omega}{\omega \cdot \sqrt{\epsilon_0 \cdot \mu_0}} = (\epsilon_0 \cdot \mu_0)^{-\frac{1}{2}} \quad (2.23)$$

L'Eq. (2.21) peut alors s'exprimer sous la forme :

$$n^2 = \epsilon_r - i \cdot \frac{\sigma}{\omega \cdot \epsilon_0} \quad (2.24)$$

L'indice de réfraction est par conséquent un nombre complexe de partie réelle  $n_r$  et de partie imaginaire  $n_i$  qui valent par identification :

$$n_r = \sqrt{\frac{\epsilon_r + \left( \epsilon_r^2 + \frac{\sigma^2}{\omega^2 \cdot \epsilon_0^2} \right)^{\frac{1}{2}}}{2}} \quad (2.25)$$

$$n_i = \pm \sqrt{\frac{-\epsilon_r + \left( \epsilon_r^2 + \frac{\sigma^2}{\omega^2 \cdot \epsilon_0^2} \right)^{\frac{1}{2}}}{2}} \quad (2.26)$$

A ce stade, il est utile de noter qu'un milieu non conducteur (conductivité  $\sigma$  nulle) conduit à partie imaginaire nulle. C'est donc la conductivité qui contrôle principalement  $n_i$ . Comme on

## 2. Des propriétés microphysiques à l'interaction avec le rayonnement

le remarquera par la suite,  $n_i$  pilote l'absorption. Cette propriété explique que les oxydes métalliques, comme les oxydes de fer (Raut et al., 2008a), qui sont de bons conducteurs, sont aussi de bons absorbants pour le rayonnement. Toutefois, contrairement à une idée répandue,  $\sigma$  intervient également dans l'expression de  $n_r$  donnée par l'Eq. 2.25, de la même manière que la constante diélectrique  $\epsilon$  influence  $n_i$ . L'influence de  $n$  sur le rayonnement apparaît plus nettement en réécrivant le champ électrique donné par la relation 2.14 :

$$\vec{E}(x,t) = E_0 \cdot \exp(\kappa \cdot t) \cdot \exp\left(-i \cdot \frac{\omega}{c}(n_r \cdot x - ct)\right) \vec{u}_y \quad (2.27)$$

avec  $\kappa$  le coefficient d'atténuation défini par :

$$\kappa = \frac{\omega \cdot n_i}{c} \quad (2.28)$$

La partie réelle de l'indice de réfraction est liée à la vitesse de propagation de l'onde électromagnétique : elle correspond physiquement à un ralentissement de la vitesse de phase et est responsable des phénomènes optiques de diffusion. La partie imaginaire représente l'effet du milieu sur l'intensité des champs. Une partie imaginaire non nulle est responsable de l'absorption de l'onde lorsqu'elle se propage à travers le milieu qu'est la particule. Pour que le champ ne croisse pas infiniment, il faut que  $\kappa < 0$ , ce qui implique une partie imaginaire négative. Par convention et dans la suite de ce manuscrit, on préfère garder  $n_i > 0$ , ce qui permet de lever l'incertitude sur l'Eq. 2.26. On a finalement :

$$n = n_r - i \cdot n_i \quad (2.29)$$

avec

$$n_i = \sqrt{\frac{-\epsilon_r + \left(\epsilon_r^2 + \frac{\sigma^2}{\omega^2 \cdot \epsilon_0^2}\right)^{\frac{1}{2}}}{2}} \quad (2.30)$$

Ajoutons enfin que si la particule peut être considéré comme un milieu avec pertes diélectriques en plus des pertes conductrices, sa permittivité elle-même apparaît comme un nombre complexe :

$$\epsilon = \epsilon' - i \cdot \epsilon'' \quad (2.31)$$

L'indice s'écrit alors sous la forme :

$$n^2 = \frac{\epsilon'}{\epsilon_0} - i \cdot \frac{\sigma + \omega \cdot \epsilon''}{\omega \cdot \epsilon_0} \quad (2.32)$$

Les relations 2.25 et 2.30 restent valables en remplaçant  $\epsilon_r$  par  $\epsilon'/\epsilon_0$  et  $\sigma$  par la conductivité équivalente  $\sigma + \omega \cdot \epsilon''$ . Le Tableau 2.3 résume les différents cas en faisant intervenir la permittivité équivalente du milieu diélectrique  $\epsilon_e$ , ce qui permet d'écrire dans le cas général :

$$n^2 = \frac{\epsilon_e}{\epsilon_0} \quad (2.33)$$

Tableau 2.3 : Permittivité équivalente d'un milieu diélectrique à pertes

Milieu	Sans pertes	Pertes conductrices	Pertes conductrices et diélectriques
Caractéristiques	$\sigma=0$ et $\epsilon$ réel	$\sigma$ fini et $\epsilon$ réel	$\sigma$ fini et $\epsilon$ complexe
$\epsilon_e$	$\epsilon_e = \epsilon$	$\epsilon_e = \epsilon - i \cdot \frac{\sigma}{\omega}$	$\epsilon_e = \epsilon' - i \cdot \frac{\sigma + \omega \cdot \epsilon''}{\omega}$

L'indice complexe de réfraction de l'aérosol, qui sera noté ACRI dans la suite pour (Aerosol Complex Refractive Index), présente une forte dépendance à la longueur d'onde. Les

## 2. Des propriétés microphysiques à l'interaction avec le rayonnement

particules sont constituées de diverses espèces chimique (Sect. 2.2.1). Chaque composant de l'aérosol a un spectre spécifique pour l'indice de réfraction (Fig. 2.5).

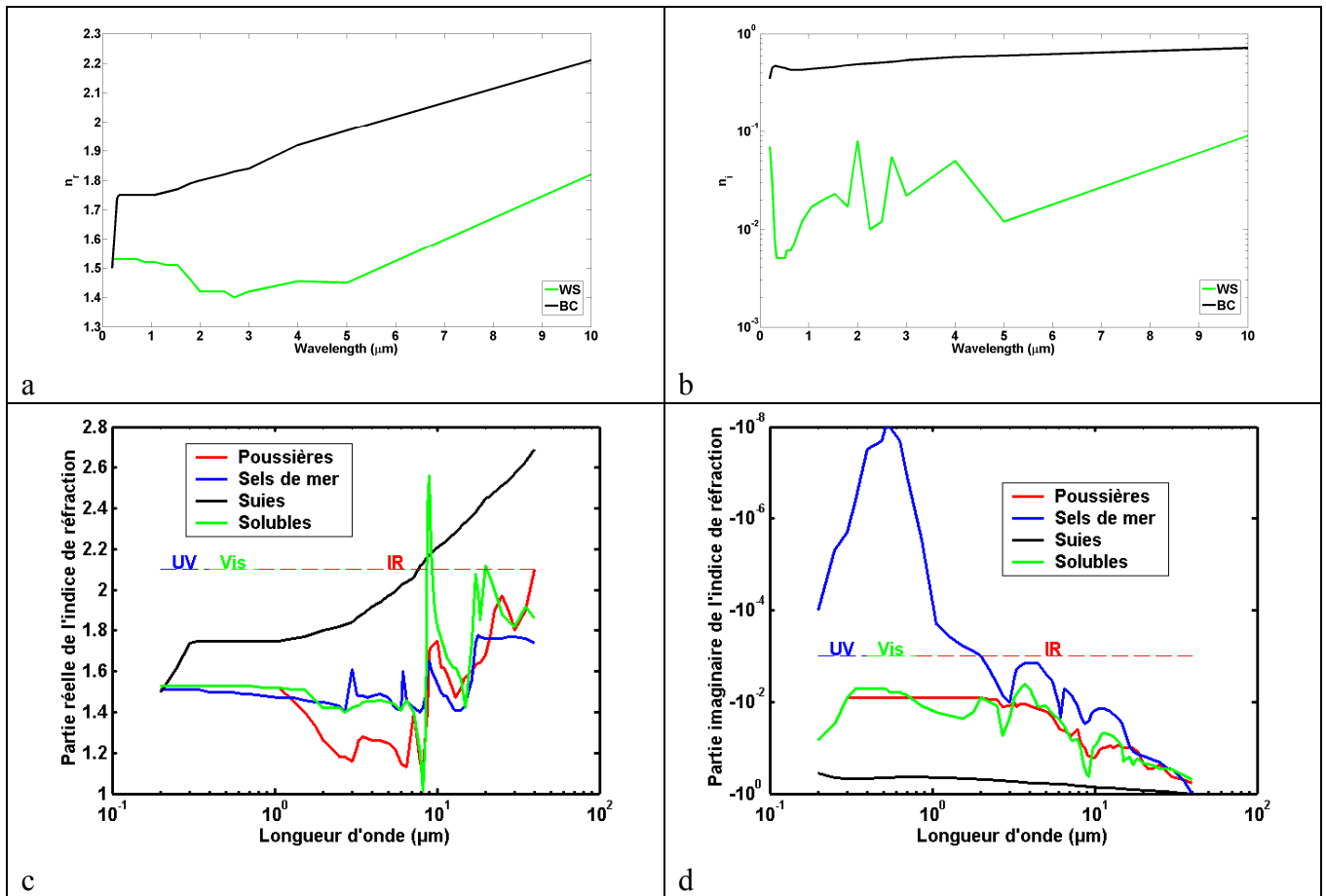


Fig. 2.5 : Evolution spectrale de l'indice de réfraction réel (a,c) et imaginaire (b,d) pour les poussières, les sels de mer, les suies et les aérosols solubles de type sulfates (d'après IAMAP, 1986 (a,b) et Volz, 1973 (c,d)).

Dans le domaine visible, il y a peu de variabilité absolue de l'indice. Pour la partie réelle, ceci reste vrai dans le spectre ultraviolet (UV) sauf pour les suies au-dessous de 0.3  $\mu\text{m}$  (Chazette, 2002). Les valeurs de la partie imaginaire sont très faibles pour les sels de mer, mais significatives pour les autres types d'aérosol, les suies constituant de loin le principal absorbant. Une bonne évaluation de l'impact radiatif visible de l'aérosol atmosphérique peut donc être conduite en supposant que l'indice de réfraction réel est constant pour chaque type d'aérosol entre 0.3 et 0.8  $\mu\text{m}$ . On peut aussi faire l'hypothèse d'une partie imaginaire constante entre 0.3 et 0.8  $\mu\text{m}$  pour l'évaluation de l'impact radiatif, la partie absorbante des sels de mer étant très faible dans le spectre UV/Visible (Chapitre 6). Dans le spectre infrarouge (IR), une telle hypothèse n'est pas réaliste. Dans leur recensement de toutes les mesures des indices de réfraction des aérosols minéraux dans l'IR, Sokolik et al. (1998) ont ainsi noté une très grande variabilité des indices avec la provenance de l'aérosol désertique car sa composition minéralogique peut être très variable selon son origine désertique et sa source, et souligné la grande incertitude sur le forçage radiatif qui en découle. Claquin (1999) a montré, pour certaines bandes spectrales, des écarts importants de la partie imaginaire de l'indice de réfraction de l'aérosol en fonction de différentes minéralogies. A la pauvreté des mesures d'indices de réfraction des aérosols sur un domaine de longueurs d'onde infrarouge assez vaste (Volz, 1972a ; Volz, 1972b ; Patterson et al., 1977 ; Carlson et Benjamin, 1980),

il faut ajouter le manque de fiabilité de certaines mesures qui présentent des valeurs de l'indice réel très différentes des valeurs des autres jeux de données, et parfois inférieures à 1 (Fouquart et al., 1987), ou des discontinuités dans le recollement de certains jeux de données (par exemple le modèle SHADE retenu suite aux observations de Highwood et al. (2003)).

Il est toutefois important de souligner que les valeurs présentées en Fig. 2.5 ont été déterminées pour un aérosol de composition moyenne équivalente à ce qui peut être rencontré dans l'atmosphère. L'observation montre que l'aérosol peut s'éloigner sensiblement de ces valeurs. La détermination de cet indice en conditions réelles lors de chaque cas d'étude est donc requise. C'est le but du Chapitre 4.

## 2.3 Diffusion simple et paramètres optiques

---

### 2.3.1 Théorie électromagnétique de la diffusion : matrices de phase et d'amplitude

De façon qualitative on peut tenter de cerner le principe de diffusion en considérant une particule quelconque irradiée par une onde électromagnétique. Lorsqu'une onde lumineuse se propage dans un milieu semi transparent, elle provoque un mouvement oscillatoire forcé des charges électriques des particules. Ces dernières se comportent alors comme des dipôles électriques oscillant à la fréquence du champ appliqué et émettent un rayonnement secondaire polarisé dans certaines directions selon la théorie électromagnétique classique. De manière générale, les relations de phase entre les ondes diffusées dépendent de facteurs géométriques (direction de diffusion, taille et forme des particules). Mais l'amplitude et la phase des moments dipolaires induits pour une fréquence donnée dépendent de la composition chimique de la particule (indice de réfraction). D'autre part, les phénomènes de diffusion provoqués par la perturbation d'une onde électromagnétique dans un milieu hétérogène constituent une source de polarisation de la lumière naturelle. Afin de mieux comprendre ces phénomènes il convient d'introduire quelques notions théoriques.

On considère une particule de taille, de forme et de composition chimique arbitraire éclairée par une onde plane scalaire se propageant selon la direction (Oz). On recherche alors, à grande distance  $d$ , une solution de l'équation d'onde pour le champ électrique sous la forme d'une onde diffusée supposée sphérique, ce qui est possible pour les particules sphériques et pour la plupart des particules de forme irrégulière. La condition à la limite impose que la composante tangentielle du champ électrique soit continue sur la surface de la particule, vérifiant la linéarité des processus mis en jeu lors du passage d'une amplitude de champ incident à une amplitude de champ diffusé. En décomposant les champs électriques incident  $E_0$  et diffusé  $E$  en deux composantes orthogonales suivant  $e_r$  et  $e_l$ , on obtient alors la relation générale suivante.

$$\begin{pmatrix} E_l \\ E_r \end{pmatrix} = S(\theta, \varphi) \cdot \frac{\exp(-ikd + ikz)}{ikd} \cdot \begin{pmatrix} E_{l0} \\ E_{r0} \end{pmatrix} \quad (2.34)$$

Où  $S(\theta, \varphi)$  représente la matrice des amplitudes ou matrice de Mueller (Mueller, 1948), composée de coefficients, en général complexes, dépendant des angles zénithal et azimutal de diffusion  $\theta$  et  $\varphi$  et des propriétés optiques du diffuseur (taille, forme et indice complexe de réfraction):



$$\mathbf{S}(\theta, \varphi) = \begin{bmatrix} S_2 & S_3 \\ S_4 & S_1 \end{bmatrix} \quad (2.35)$$

L'Eq. 2.34 est une équation fondamentale du rayonnement diffusé incluant la polarisation dans le champ lointain.  $\exp(ikz)$  rappelle l'onde plane incidente et  $\exp(-ikd)/(ikd)$  l'onde diffusée. Afin de décrire le rayonnement diffusé et son état de polarisation, la relation 2.34 peut être appliquée aux paramètres de Stokes ( $I, Q, U, V$ ) (Stokes, 1852) qui décrivent complètement l'état de polarisation d'une onde électromagnétique. Ils ont la dimension d'une énergie ce qui les rend additifs (utilisation dans les modèles numériques de ray-tracing). En introduisant la matrice de phase  $\mathbf{F}$  (matrice 4x4 asymétrique déduite de  $\mathbf{S}$  (Bohren et Huffman (1983))), on obtient les paramètres de Stokes de l'onde diffusée ( $I, Q, U, V$ ) comme une combinaison linéaire des paramètres de l'onde incidente ( $I_0, Q_0, U_0, V_0$ ) :

$$\{I, Q, U, V\} = \frac{4\pi}{k^2} \mathbf{F} \cdot \{I_0, Q_0, U_0, V_0\} \quad (2.36)$$

En transfert radiatif, on préfère utiliser la matrice de diffusion  $\mathbf{P}$ , équivalente à une matrice  $\mathbf{F}$  qui serait normalisée. Le premier élément  $P_{11}$  représente alors la fonction de phase normalisée pour une particule unique. Il est normalisé selon :

$$\frac{1}{4\pi} \int_0^{4\pi} P_{11}(\Omega) \cdot d\Omega = 1 \quad (2.37)$$

où

$$d\Omega = \sin(\theta) \cdot d\theta \cdot d\varphi \quad (2.38)$$

correspond à l'élément d'angle solide autour d'une direction de diffusion  $(\theta, \varphi)$ .  $P_{11}$  est donc une fonction sans unité de la direction et dépend de l'orientation de la particule par rapport au faisceau incident, mais aussi de la taille, de la forme et de la composition physico-chimique de la particule (indice de réfraction). Elle correspond à la densité de probabilité pour qu'un photon soit diffusé dans un angle solide élémentaire  $d\Omega$ .

Pour des particules orientées aléatoirement dans l'espace et présentant un plan de symétrie, la matrice  $\mathbf{F}$  présente une dépendance angulaire uniquement sur  $\theta$  (angle relatif entre directions incidente et émergente) et n'est composée que de 6 paramètres indépendants (et même 4 pour une particule sphérique), et l'Eq. 2.37 s'écrit :

$$\frac{1}{2} \int_0^\pi P_{11}(\theta) \sin(\theta) d\theta = 1 \quad (2.39)$$

### 2.3.2 Propriétés optiques d'un aérosol

Afin, d'établir la relation entre la matrice de diffusion  $\mathbf{P}$  et la matrice de phase  $\mathbf{F}$ , il convient de définir une grandeur appelée section efficace de diffusion  $\sigma_{scat}$  de la particule irradiée par l'onde électromagnétique incidente.  $\sigma_{scat}$  représente la surface qui reçoit la même quantité d'énergie que celle qui est diffusée dans toutes les directions par la particule :

$$\sigma_{scat} = \frac{1}{k^2} \int F_{11} \cdot d\Omega = \frac{2\pi}{k^2} \int_0^\pi F_{11}(\theta) \sin(\theta) d\theta \quad (2.40)$$

avec :

$$F_{11}(\theta) = \frac{|S_1(\theta)|^2 + |S_2(\theta)|^2}{2} \quad (2.41)$$

Cela conduit à :

$$\frac{P}{4\pi} = \frac{F}{\sigma_{scat} \cdot k^2} \quad (2.42)$$

et :

$$\frac{P_{11}}{4\pi} = \frac{1}{\sigma_{scat}} \cdot \frac{d\sigma_{scat}}{d\Omega} \quad (2.43)$$

Les matrices de diffusion et de phase permettent alors de définir un certain nombre de grandeurs optiques caractéristiques des propriétés de diffusion des particules atmosphériques jouant un rôle prépondérant dans la résolution de l'équation du transfert radiatif. De façon similaire à la définition de  $\sigma_{scat}$ , on peut assimiler l'énergie absorbée et l'énergie interceptée par la particule comme étant l'énergie tombant respectivement sur les surfaces  $\sigma_{abs}$  et  $\sigma_{ext}$ . En prenant en compte les phénomènes d'interférences entre champ incident et champ diffusé dans la direction de diffusion avant ( $\theta=0^\circ$ ), la section efficace d'extinction  $\sigma_{ext}$  s'exprime de façon générale par l'intermédiaire de la partie réelle de la matrice d'amplitude  $S$  :

$$\sigma_{ext} = \frac{4\pi}{k^2} \cdot \Re\{S(\theta = 0^\circ)\} \quad (2.44)$$

Et d'après la loi de conservation de l'énergie:

$$\sigma_{abs} = \sigma_{ext} - \sigma_{scat} \quad (2.45)$$

En accord, avec ces paramètres de la dimension d'une surface ( $\mu m^2$ ), il est possible de définir des grandeurs sans dimensions appelées efficacité de diffusion, d'absorption ou d'extinction quantifiant la diminution d'énergie incidente par une particule:

$$Q_{scat} = \frac{\sigma_{scat}}{G} \quad (2.46)$$

$$Q_{ext} = \frac{\sigma_{ext}}{G} \quad (2.47)$$

$$Q_{abs} = \frac{\sigma_{abs}}{G} \quad (2.48)$$

$G$  représente la section droite géométrique de la particule ou la moyenne des surfaces géométriques projetées pour des particules. La section droite géométrique correspond à  $\pi r^2$  pour une particule sphérique,  $r$  désignant le rayon de la particule. Dans le cas de particules sphériques, l'Eq. 2.34 sert de base à la théorie de Mie caractérisée par des symétries au sein de la matrice d'amplitude. Dans ce cas, la matrice est diagonale :

$$S_3 = S_4 = 0 \quad (2.49)$$

Cette théorie permet d'aboutir à des expressions explicites, sous forme de séries, pour les sections efficaces et la fonction de phase. Elle a été démontrée par Gustav Mie en 1908 (Mie, 1908) et avait été étudiée auparavant par Lorenz en 1891, mais également par Love en 1899 et Debye en 1909, d'où l'appellation parfois de «théorie de «Lorenz-Mie-Debye». Les paramètres fondamentaux de la théorie de Mie sont d'une part l'indice complexe de réfraction et d'autre part le paramètre de taille,  $2\pi r/\lambda$  où  $\lambda$  est la longueur d'onde du rayonnement incident. Le paramètre de taille est la variable essentielle pour savoir si l'on peut effectuer l'approximation simplificatrice du dipôle électromagnétique (Rayleigh, 1889).

## 2. Des propriétés microphysiques à l'interaction avec le rayonnement

Les variations des efficacités d'extinction, de diffusion et d'absorption ainsi que celles des sections efficaces correspondantes et de l'albédo de simple diffusion en fonction du paramètre de taille sont reportées sur les Fig. 2.6 et 2.7 pour différents indices de réfraction, dans le cas d'une particule unique. Ces calculs ont été obtenus par application de la théorie de Mie : ils supposent donc des aérosols sphériques.

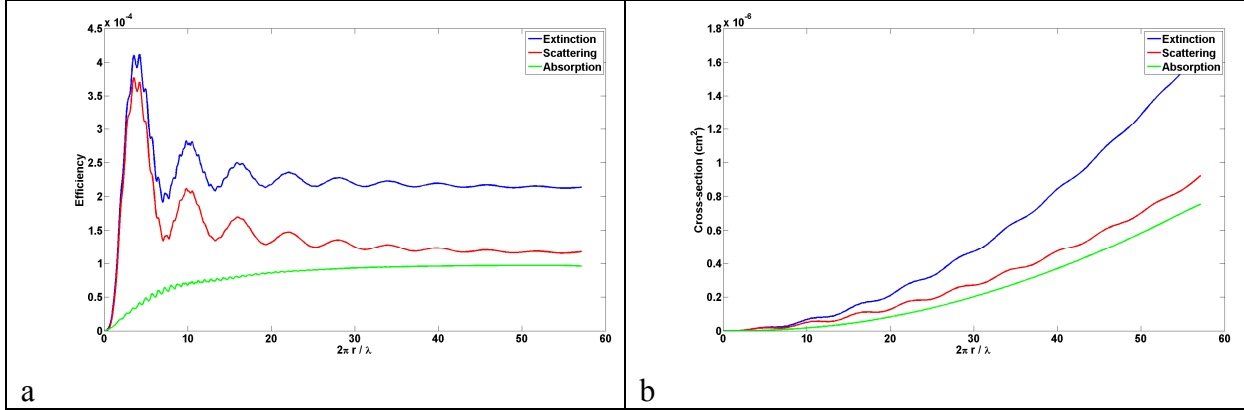


Fig 2.6 : Efficacités (a) et sections efficaces (b) d'extinction, de diffusion et d'absorption en fonction du paramètre de taille obtenues par application de la théorie de Mie sur une particule unique d'indice  $1.53 - 0.02i$  à  $550 \text{ nm}$ .

La valeur du facteur d'efficacité d'extinction est presque nulle dans le cas des très petites particules du fait de leur très faible interaction avec le rayonnement. Ce paramètre optique augmente brutalement lorsque le rayon des particules est similaire à la longueur d'onde (paramètre de taille de l'ordre de 6 environ). L'efficacité d'extinction est caractérisée par une série d'oscillations qui résultent de phénomènes d'interférences entre les ondes transmises sans déviation à travers la particule et les ondes diffractées. La période des oscillations dépend de l'indice de réfraction (Fig. 2.7). L'absorption réduit les oscillations d'interférence (courbe rouge sur la Fig. 2.7a).

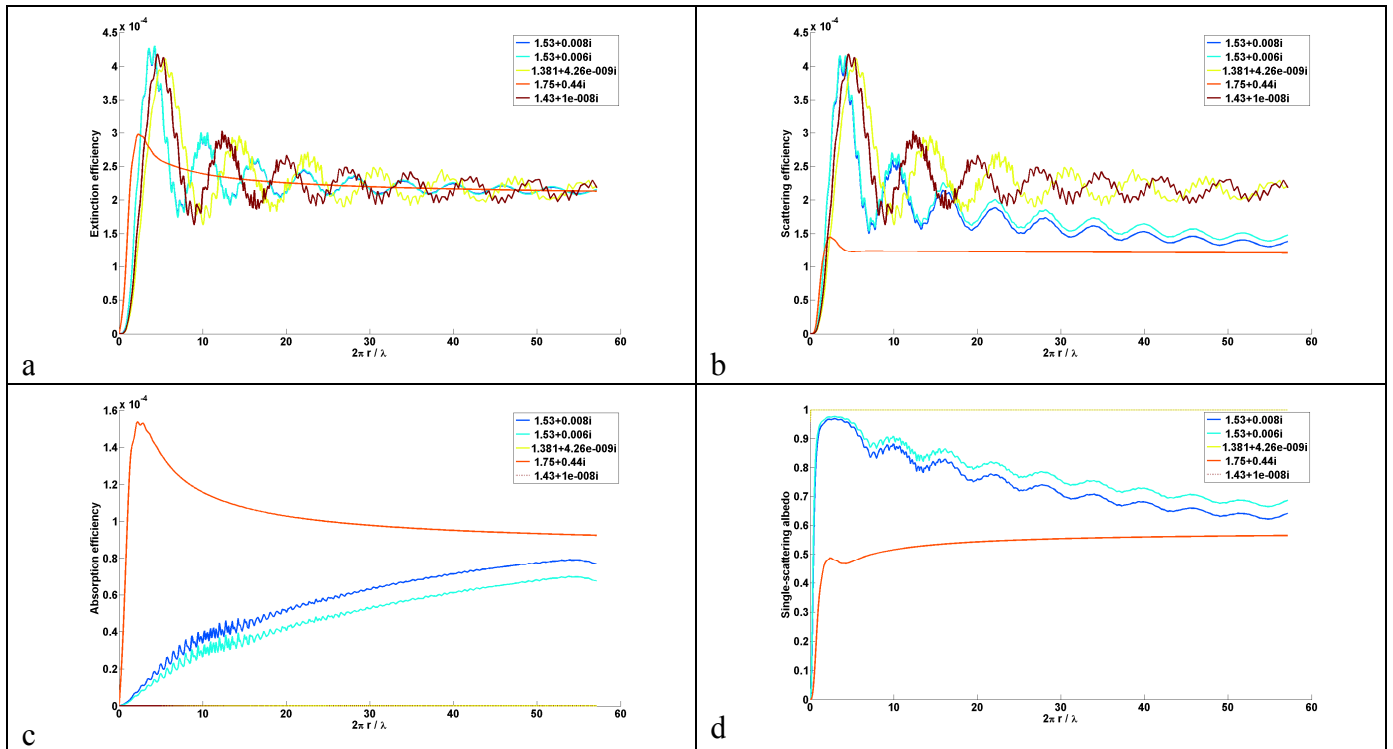


Fig 2.7 : Efficacités d'extinction (a), de diffusion (b) et d'absorption (c) et albédo de simple diffusion (d) (défini par l'Eq. 2.50) en fonction du paramètre de taille obtenus par application de la théorie de Mie sur une particule unique à 550 nm. Différents jeux d'indice de réfraction ont été utilisés. Ils correspondent à des valeurs typiques pour les Dust (bleu), WS (cyan), SS (jaune), BC (rouge) et sulfates volcaniques (marron).

Un autre résultat remarquable est la tendance asymptotique de l'efficacité d'extinction vers 2 pour des particules de grande taille, quel que soit l'indice de réfraction complexe de la particule (Fig. 2.7a). Par conséquent, ces particules atténuent deux fois plus d'énergie que ne le ferait leur section droite géométrique. Elles interceptent donc deux fois plus d'énergie que le prédiraient les lois de l'optique géométrique. Ce phénomène est appelé paradoxe de l'extinction (Van de Hulst, 1981; Bohren and Huffman, 1983). De manière qualitative, l'onde incidente est influencée au-delà des limites physiques de la sphère ; le bord de la sphère dévie des rayons passant au voisinage de celui-ci, alors que les lois de l'optique géométrique auraient prédit leur passage sans modification. Ces effets de diffraction augmentent avec le rayon de la sphère et sont équivalents à la diffraction par un trou, et cela en vertu du principe de Babinet. Ce phénomène de diffraction de la lumière sur les bords de la particule contribue pour moitié à l'extinction totale, la somme des deux processus de diffusion faisant 2 (Fig. 2.7).

De plus, toute la lumière géométriquement incidente qui n'est pas réfléchie entre dans la sphère pour y être absorbée, pour peu que la partie imaginaire de l'indice de réfraction ne soit pas identiquement nulle (Fig. 2.6a). La section efficace d'absorption augmente avec le volume de la particule où pénètre le rayonnement. Aussi le facteur d'efficacité d'absorption croît-il avec la taille des particules jusqu'à la valeur asymptotique 1.

Pour une valeur donnée de  $n_r$ , une augmentation de  $n_i$  abaisse la valeur du pic d'efficacité de diffusion et diminue le rayon auquel ce pic apparaît. Ces deux phénomènes liés à l'augmentation de  $n_i$  soulignent qu'une part plus grande de l'énergie totale est convertie en absorption plutôt qu'en diffusion. La Fig. 2.7c présente l'efficacité d'absorption. Augmenter  $n_i$  à  $n_r$  constant revient à surhausser la courbe d'absorption. Dans le cas des particules microniques, l'efficacité d'absorption atteint la valeur asymptotique de 1 environ. Lorsque l'absorption est très forte (suie), un pic dans l'efficacité d'absorption est observé et ce dernier est peu affecté par la partie réelle (augmenter  $n_r$  revient à augmenter légèrement la valeur du pic). On peut noter que le facteur d'efficacité d'extinction est quasiment constant avec l'indice réel et reste proche de la valeur 2, sauf dans le cas des petites particules où ce paramètre optique est très sensible à la valeur de l'indice réel. Plus  $n_r$  est grand, plus le pic d'efficacité de diffusion est prononcé et se décale vers les petites tailles.

Les amplitudes relatives des processus de diffusion et d'absorption de la lumière par les aérosols sont exprimées par l'albédo de simple diffusion  $\omega_0$ , correspondant à la fraction de lumière diffusée par une particule :

$$\omega_0 = \frac{\sigma_{scat}}{\sigma_{ext}} \quad (2.50)$$

Cette grandeur est particulièrement importante dans la résolution de l'équation du transfert radiatif puisqu'elle représente la probabilité pour qu'un photon soit diffusé plutôt qu'absorbé lors de son interaction avec une particule à une longueur d'onde donnée. Par définition, il varie entre 0 (particule purement absorbante) et 1 (particule purement diffusante) suivant les sources d'aérosols et les processus de vieillissement de celui-ci. Le co-albédo de simple

diffusion ( $1-\omega_0$ ) est également très utilisé dans les calculs de transfert radiatif parce qu'il donne une indication sur la quantité d'énergie absorbée.

Les variations de  $\omega_0$  résultent du comportement des efficacités d'extinction et d'absorption.  $\omega_0$  qui est petit pour les petites particules possède une valeur maximale proche de 1 pour un rayon proche de  $\lambda$  (Fig. 2.7). Au-delà de cette valeur, l'albédo de diffusion simple décroît lentement vers la valeur asymptotique de 0.5 correspondant au cas où le rayonnement pénétrant à l'intérieur de la particule serait fortement absorbé. Si l'indice imaginaire est inférieur à  $10^{-4}$  (courbes jaune et marron en Fig. 2.7c et 2.7d), l'albédo de diffusion simple a une valeur proche de 1 et celle du facteur d'efficacité d'absorption est très faible ; les particules sont alors purement diffusantes. En revanche,  $\omega_0$  est très peu influencé par  $n_r$  (Raut and Chazette, 2007).

Un autre paramètre, le facteur d'asymétrie  $g$ , peut être utilisé pour caractériser la diffusion par une particule. Il est défini par l'intermédiaire de la fonction de phase et du cosinus de l'angle de diffusion. Si on pose

$$\mu = \cos(\theta) \quad (2.51)$$

le facteur d'asymétrie s'exprime selon:

$$g = \langle \cos(\theta) \rangle = \frac{2\pi \cdot \int_0^\pi \cos(\theta) \cdot F_{11}(\theta) \sin(\theta) d\theta}{k^2 \cdot \sigma_{scat}} = \frac{1}{2} \int_{-1}^1 p(\mu) \cdot \mu \cdot d\mu \quad (2.52)$$

Ce paramètre a l'avantage d'exprimer sommairement l'orientation préférentielle du rayonnement diffusé. La valeur de  $g$  est comprise entre  $-1$  et  $1$  et permet de déterminer la quantité de lumière diffusée vers l'avant ou vers l'arrière. Pour une valeur positive de  $g$ , la diffusion en direction de lumière incidente sera prépondérante, pour une valeur négative, la diffusion sera principalement dirigée dans une direction opposée à la direction de la lumière incidente (rétrodiffusion). Une valeur de  $g=0$  indique une diffusion isotrope (diffusion symétrique avant-arrière). Dans le cas des aérosols atmosphériques considérés ici,  $g$  est toujours positif, ce qui signifie que la plus grande partie du rayonnement diffusé est diffusée vers l'avant.

### 2.3.3 Propriétés optiques de la distribution d'aérosols

Les propriétés optiques introduites précédemment ( $\sigma_{ext}$  ou  $Q_{ext}$ ,  $\omega_0$  et  $g$ ) ne dépendent pas de la concentration en aérosols, ce qui n'est pas le cas du champ de rayonnement. L'intégration des quantités précédentes sur une distribution en taille (Sect. 2.2.2) fournit les coefficients de diffusion  $\alpha_{scat}$ , d'absorption  $\alpha_{abs}$  et d'extinction  $\alpha_{ext}$ , ainsi que la fonction de phase  $p$  pour la distribution en taille de particules  $dN/d\ln(r)$  :

$$\alpha_i(\lambda) = \int_0^\infty G \cdot Q_i(r, \lambda) \cdot \frac{dN}{d\ln(r)} \cdot \frac{1}{r} dr \quad (2.53)$$

où  $i$  désigne ext, abs ou scat.

$$p(\theta, \lambda) = \frac{1}{\sigma_{scat}} \int_0^\infty G \cdot Q_{scat}(r, \lambda) \cdot P_{11}(r, \theta) \cdot \frac{dN}{d\ln(r)} \cdot \frac{1}{r} dr \quad (2.54)$$

De même la fonction de phase polarisée  $p_{polar}$  s'exprime par :

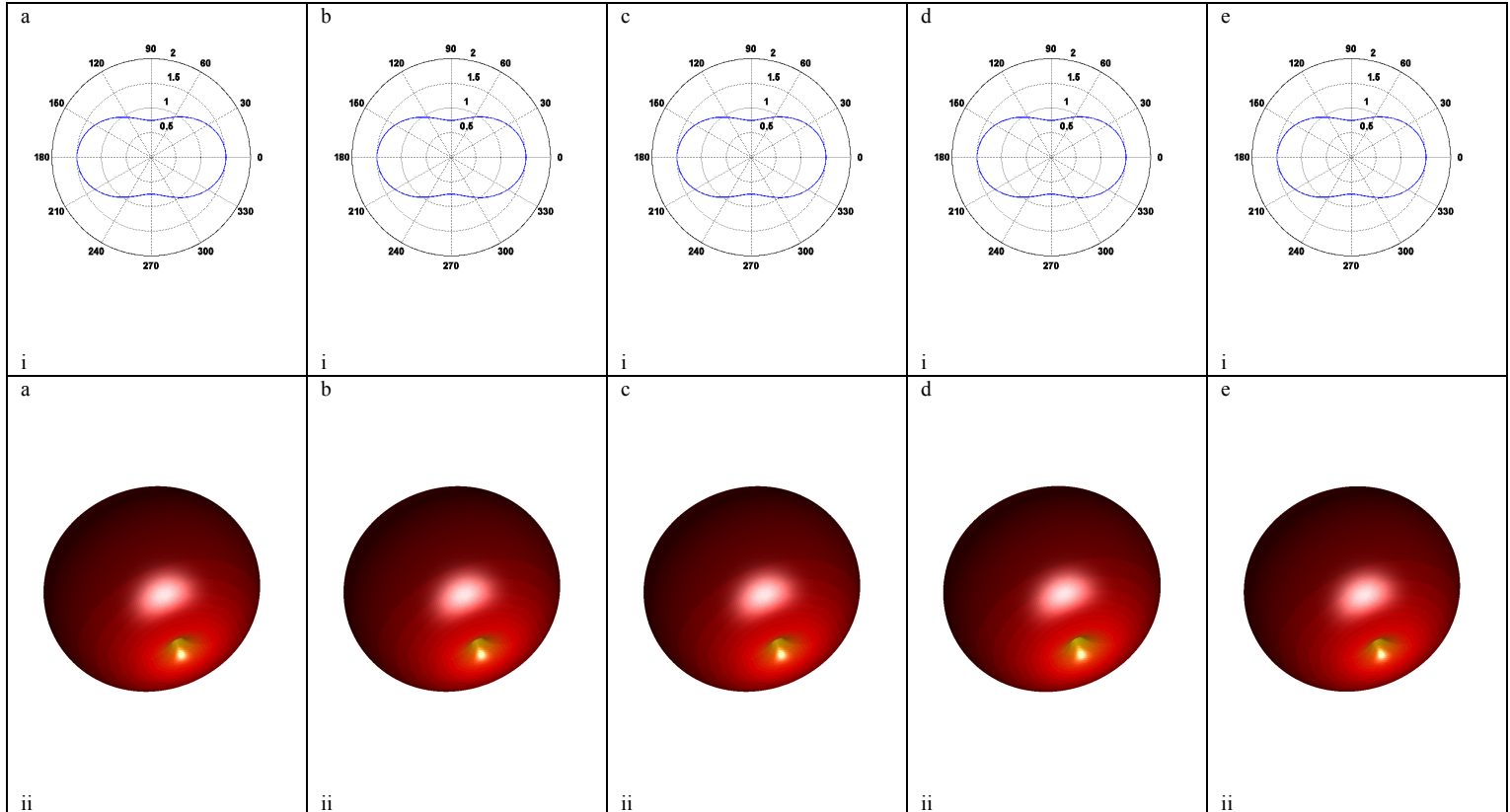
## 2. Des propriétés microphysiques à l'interaction avec le rayonnement

$$p_{polar}(\theta, \lambda) = \frac{1}{\sigma_{scat}} \int_0^{\infty} G \cdot Q_{scat}(r, \lambda) \cdot P_{12}(r, \theta) \cdot \frac{dN_n}{d \ln(r)} \cdot \frac{1}{r} dr \quad (2.55)$$

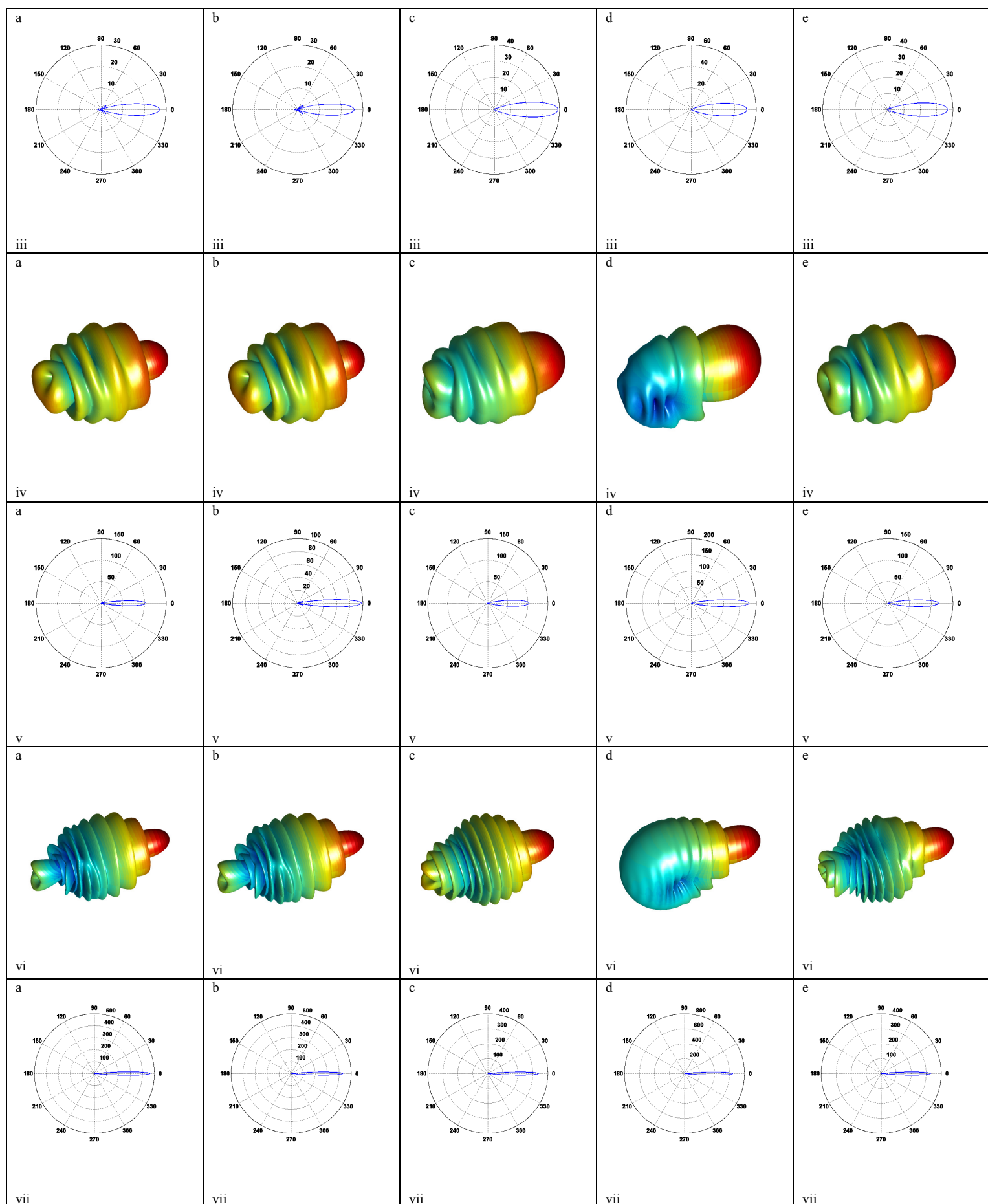
Ce qui permet d'obtenir le taux de dépolarisation  $\tau_{polar}$ , utile dans le cadre des mesures lidar :

$$\tau_{polar}(\theta, \lambda) = -\frac{p_{polar}(\theta, \lambda)}{p(\theta, \lambda)} \quad (2.56)$$

Les Fig. 2.8 et 2.9 fournissent des résultats importants sur la fonction de phase. Les calculs ont été effectués sur des particules individuelles en Fig. 2.8 et issues de distributions en taille en Fig. 2.9. Une grande partie de l'information concernant la taille des particules peut être extraite du comportement de la fonction de phase pour des angles correspondant à la diffusion avant et dans une moindre mesure à la diffusion latérale. Les différentes fonctions de phases ou indicatrices de diffusion montrent qu'une augmentation de la taille de la particule provoque une augmentation significative de la quantité d'énergie diffusée vers l'avant ( $0^\circ < \theta < 5^\circ$ ). Ce pic est dû à la diffraction de Fraunhofer et a tendance à s'atténuer lorsque le paramètre de taille décroît. Comme l'indique la Fig. 2.8, la taille joue un rôle plus important sur la diffusion dans le domaine UV-visible que l'indice de réfraction. A l'inverse, pour les aérosols de plus petite taille, le pic de diffusion arrière, appelée gloire ou anti-couronne ( $\theta \sim 180^\circ$ ), diminue et l'énergie diffusée latéralement ( $65^\circ < \theta < 140^\circ$ ) augmente en vertu des lois de conservation de l'énergie. Ajoutons pour la Fig. 2.9 que les effets d'absorption, provoqués par l'augmentation de la partie imaginaire de l'indice de réfraction complexe des particules des aérosols issus de feux de biomasse (par rapport aux poussières), sont les principaux responsables du comportement particulier de la fonction de phase. La connaissance de la fonction de phase apporte donc des informations cruciales sur la taille des aérosols mais également dans une moindre mesure sur leur indice de réfraction. La détermination de ce dernier est donc délicate et mérite un attrait tout particulier (Chapitres 4 et 5).



## 2. Des propriétés microphysiques à l'interaction avec le rayonnement



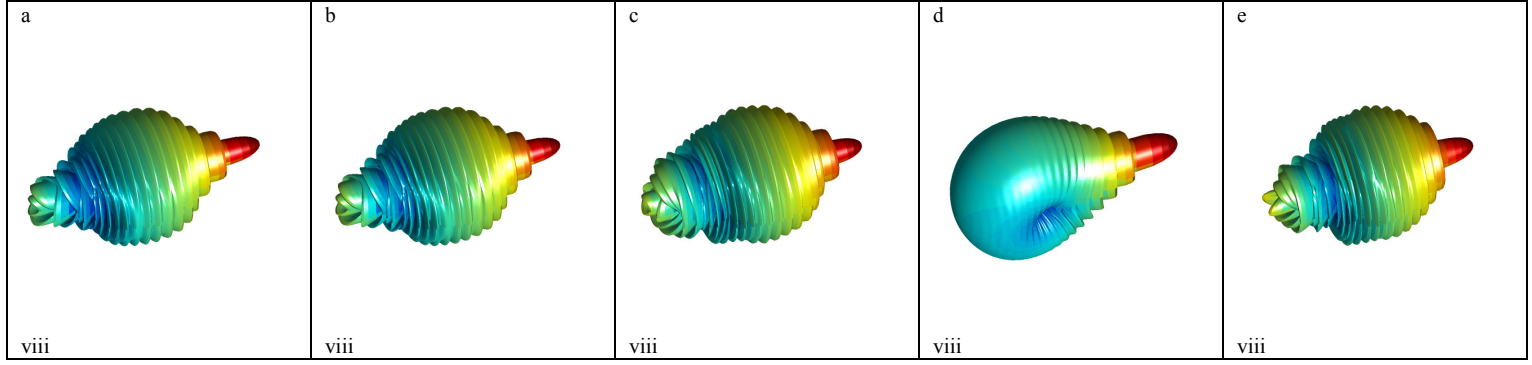


Fig. 2.8 : Indicatrices de diffusion simulées par un code de Mie à 550 nm pour différents types de particules (a : Dust, b : WS , c : SS, d : BC et e : sulfates volcaniques) et différents paramètres de taille (i : 0.1, iii : 6.3, v : 12.6, vii : 25.2). Les représentations tridimensionnelles (en ii, iv, vi et viii) fournissent une vue éclatée des indicatrices correspondantes (i, iii, v, vii, respectivement) au niveau de l'impact entre le rayonnement (venant de la gauche vers la droite) et l'aérosol. L'échelle de couleur représente l'amplitude de la fonction de phase en valeur logarithmique.

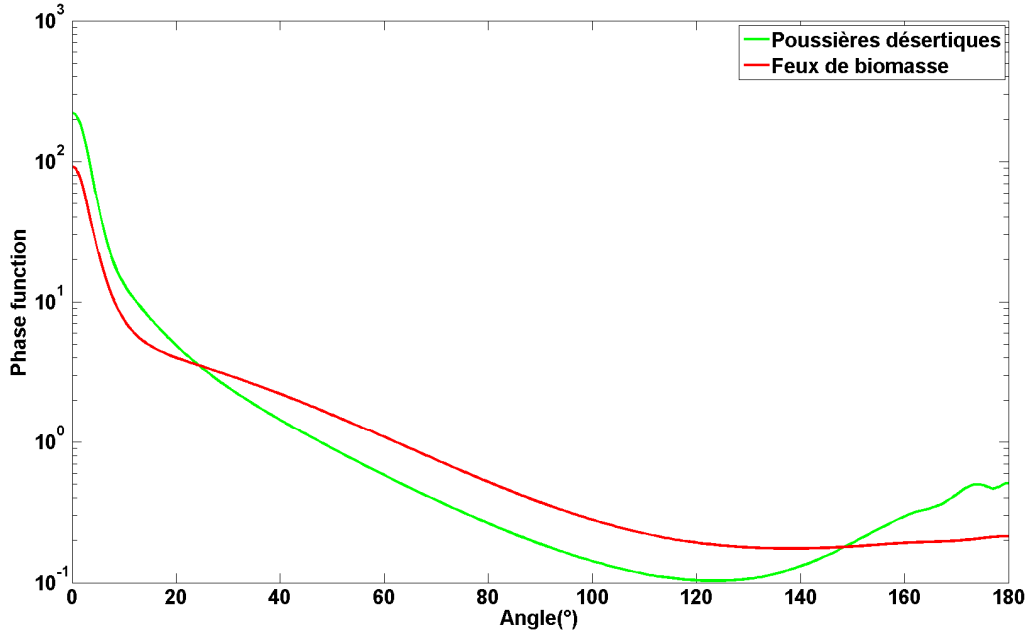


Fig. 2.9 : Fonction de phase simulée par la théorie de Mie à 550 nm pour les distributions en taille normalisée typiques des poussières désertiques et aérosols issus de feux de biomasse présentées en Fig. 2.3 avec les indices de réfraction de  $1.52-0.008i$  et  $1.53-0.047i$  respectivement (Raut and Chazette, 2008b).

La dépendance en fonction spectrale peut s'exprimer par le coefficient d'Ångström  $a$  défini pour deux longueurs d'onde  $\lambda_1$  et  $\lambda_2$  par :

$$a = \frac{\ln\left(\frac{\alpha_{ext}(\lambda_2)}{\alpha_{ext}(\lambda_1)}\right)}{\ln\left(\frac{\lambda_1}{\lambda_2}\right)} \quad (2.57)$$



$a$  est un indicateur de la taille et du type d'aérosol. Plus sa valeur est proche de 4 (valeur caractéristique des molécules gazeuses), plus les particules sont de petite taille. L'aérosol de pollution présente généralement une valeur de  $a$  au voisinage de 2 tandis que les aérosols désertiques ou les sels de mer ont des valeurs de  $a$  proches de 0.

Lorsque le rayonnement solaire traverse une couche d'aérosols dans l'atmosphère, il se trouve atténué par diffusion et par absorption en présence de particules. On peut écrire la relation de Beer-Bouguer-Lambert pour la luminance monochromatique  $L_\lambda(T)$  à la température  $T$ , i.e. la densité surfacique de flux rayonnée par l'onde électromagnétique par intervalle spectral autour de  $\lambda$  et par unité d'angle solide, lors de la traversée du milieu :

$$\frac{dL_\lambda(T)}{ds} = -\alpha_{ext}(\lambda, s) \cdot L_\lambda(T) \quad (2.58)$$

où  $ds$  est l'épaisseur infinitésimale du milieu traversé par l'onde. En notant  $L_{\lambda,0}(T)$  la luminance incidente,  $L_\lambda(T)$  la luminance après traversée du milieu, on obtient par intégration :

$$L_\lambda(T) = L_{\lambda,0}(T) \cdot \exp\left(-\int_0^s \alpha_{ext}(\lambda, s') \cdot ds'\right) \quad (2.59)$$

On appelle transmission le terme  $\exp(-\tau(\lambda))$ , où

$$\tau(\lambda) = \int_0^s \alpha_{ext}(\lambda, s') \cdot ds' \quad (2.60)$$

désigne l'épaisseur optique de l'aérosol à la longueur d'onde  $\lambda$ .

### 2.3.4 Domaine de diffusion Rayleigh

L'approximation de Rayleigh peut être considérée comme la limite inférieure du domaine de diffusion de Mie. Les oscillations des fonctions de phase dans le cas d'une particule unique, observées sur les Fig. 2.6 et 2.7 sont provoquées par les propriétés des fonctions de Riccati-Bessel qui permettent de calculer les coefficients de Mie. Les oscillations ont tendance à disparaître lorsque l'on calcule une fonction de phase pour un ensemble de particules mais aussi quand le paramètre de taille est petit. Les molécules de gaz en particulier ont des tailles de l'ordre de l'Angström, très petites devant la longueur d'onde du rayon incident. Elles diffusent donc la lumière selon la théorie de Rayleigh. Les expressions approchées des fonctions de phase totale et polarisée (Eq. 2.54 et 2.55) des molécules s'écrivent :

$$p(\theta) = \frac{3}{4} \cdot (1 + \cos^2(\theta)) \quad (2.61)$$

$$p_{polar}(\theta) = \frac{3}{4} \cdot (1 - \cos^2(\theta)) \quad (2.62)$$

Le facteur de dépolarisation pour l'air est approximativement égal à 0.028 (Hansen and Travis, 1974).

La section efficace de diffusion suit approximativement une loi au 1<sup>er</sup> ordre en  $\lambda^{-4}$  et dépend de la pression atmosphérique et dans une moindre mesure de l'humidité relative. L'intensité diffusée augmente donc rapidement avec les longueurs d'onde décroissantes à la fois pour le rayonnement total et le rayonnement polarisé. Notons que pour les courtes longueurs d'onde (355 nm dans notre étude), la loi en  $\lambda^{-4}$  n'est plus adaptée. Des facteurs correctifs sont

introduits pour tenir compte de la variation spectrale de la section efficace de diffusion moléculaire (Hansen and Travis, 1974). Elle s'exprime alors sous la forme empirique (Nicolet, 1984) :

$$\sigma_{scat,m}(\lambda) = 3.90 \cdot 10^{-28} \cdot \lambda^{-PL} \quad (2.63)$$

Où  $PL$  est un exposant qui tient compte de l'anisotropie des molécules.  $PL$  s'exprime en fonction de  $\lambda$  sous la forme :

$$PL = 3.916 + 0.074 \cdot \lambda + \frac{0.05}{\lambda} \quad (2.64)$$

Une relation identique existe pour la section efficace de rétrodiffusion :

$$\frac{\partial \sigma_{scat,m}}{\partial \Omega_{scat}} = 4.678 \cdot 10^{-29} \cdot \lambda^{-PL} \quad (2.65)$$

La connaissance de la densité atmosphérique (dépendante par la loi des gaz parfaits des conditions de pression et température obtenues par des capteurs in situ, des radiosondages ou des modèles atmosphériques) fournit alors les coefficients de rétrodiffusion et d'extinction moléculaires.

Les coefficients présentés à la Sect. 2.3.3 et qui décrivent les propriétés optiques de l'aérosol vont conditionner son impact sur le bilan radiatif. Les variations de ces coefficients en fonction de la longueur d'onde, de la composition chimique, de la morphologie interne et externe et de la taille des particules sont à la base des techniques de restitution de paramètres microphysiques par télédétection (D'Almeida et al., 1991 ; Lenoble, 1993). La forme des aérosols et l'humidité relative de l'atmosphère sont des facteurs qui peuvent affecter les propriétés optiques de l'aérosol. La matrice des amplitudes est en effet influencée par les relations de continuité à la surface des particules, sphériques ou non. De plus, la réaction d'une particule avec l'eau modifie sa taille et son indice de réfraction, ce qui entraîne des modifications de ses propriétés optiques. L'affinité de l'aérosol avec l'eau, appelée hygroscopicité, dépend de sa composition chimique, de sa taille et de son état de mélange. Les influences réciproques de la forme et de l'hygroscopicité sont discutées dans la Sect. 2.4.

## 2.4 Influence de l'effet de l'eau et de la forme des particules sur leurs propriétés microphysiques et optiques

---

### 2.4.1 Hygroscopicité

L'humidité relative (RH) est un des paramètres clés qui influence les propriétés optiques de l'aérosol. Au-dessus de  $RH \sim 60\%$ , l'humidité devient une variable importante. Cela est lié d'une part au fait que l'eau représente plus de 50% de la masse des particules fines lorsque RH dépasse 70-80% (Hänel, 1976 ; Zhang and McMurry, 1993 ; McMurry, 2000), et d'autre part à la dépendance à l'humidité des autres variables (Covert et al., 1972 ; Clarke et al., 2004). Or, la plupart des mesures d'aérosol sont réalisées en introduisant l'air ambiant dans des conditions abritées (Nessler et al., 2005a), ce qui peut produire un gradient de température et un changement de RH. Le principe de certains instruments lui-même peut limiter la possibilité de travailler à des RH plus élevés (par exemple des mesures d'absorption

lumineuse par dépôt sur un filtre). Par conséquent, des mesures d'aérosol sont souvent effectuées dans des conditions sèches ( $RH < 40\%$ ). La dépendance à RH des paramètres optiques mérite donc d'être traitée pour une meilleure évaluation du forçage radiatif de l'aérosol dans les conditions ambiantes.

L'augmentation de RH peut conduire à une condensation de vapeur d'eau sur les diffuseurs que sont les aérosols en fonction de leur composition chimique (e.g. Tang and Munkelwitz, 1993). Ce phénomène engendre un accroissement de la taille des particules, appelé croissance hygroscopique de l'aérosol. Pour une humidité avoisinant les 90%, le volume de la particule peut être augmenté de plus de 6 fois par rapport au volume de la particule sèche (Hodzic, 2005 ; Randriamiarisoa et al., 2006). Ainsi un grand nombre de petites particules submicroniques solubles et hydrophiles grossissent au cours de l'humidification par absorption et condensation vers un domaine de taille plus efficace pour la diffusion de la lumière visible ( $\sim 0.5 - 1 \mu m$ ) (Bohren and Huffman, 1998). L'esprit de l'équation empirique permettant de caractériser la croissance en taille est la théorie de Köhler (Seinfeld and Pandis, 1998). L'équation la plus populaire a été introduite par Hänel (1976) :

$$r_w = r \cdot (1 - RH)^{-\varepsilon} \quad (2.66)$$

Le suffixe  $w$  indique que la variable est considérée à l'humidité ambiante RH, i.e. dans les conditions humides (wet en anglais). Le coefficient  $\varepsilon$  dépend du type d'aérosol et du mélange considérés. Des valeurs de  $\varepsilon$  de l'ordre de 0.19-0.22 (Weingartner et al., 2002), 0.25 (Chazette and Liousse, 2001), 0.26 (Randriamiarisoa et al., 2006) ou encore 0.285 (Hänel, 1976) figurent dans la littérature pour différents types d'aérosols.

Parallèlement à la croissance en taille, l'indice de réfraction des particules décroît en raison d'un indice de l'eau plus faible dans le domaine visible ( $1.33 \cdot 10^{-8}i$ ). On utilise la relation simple de pondération volumique (Chapitre 4) pour écrire l'indice de réfraction effectif  $n_w$  de l'aérosol humide, constitué de la particule sèche (volume  $V$ , indice  $n$ ) et de l'eau (volume  $V_{H_2O}$  et indice  $n_{H_2O}$ ) pendant l'humidification à RH :

$$n_w = \frac{n \cdot V + n_{H_2O} \cdot V_{H_2O}}{V + V_{H_2O}} = n_{H_2O} + (n - n_{H_2O}) \cdot \frac{V}{V + V_{H_2O}} \quad (2.67)$$

qui peut donc aussi s'écrire :

$$n_w = n_{H_2O} + (n - n_{H_2O}) \cdot \left( \frac{r_w}{r} \right)^{-3} \quad (2.68)$$

Cette équation est aussi connue sous le nom de relation de Hänel. Néanmoins, le double effet contradictoire (croissance de taille et décroissance de l'indice) conduit généralement, par compensation, à une augmentation de la diffusion (Covert et al., 1972) et dans une moindre mesure à un changement ses propriétés absorbantes (Sloane, 1983). La Fig. 2.10 illustre ce double effet à partir de simulations réalisées par un code de Mie des efficacités de diffusion, d'extinction et d'absorption à différentes valeurs de RH. Elle met en évidence une nette baisse de leur efficacité d'absorption avec l'augmentation de l'humidité relative en raison de leur indice imaginaire plus faible. Leur section efficace d'absorption continue cependant de croître avec leur rayon, mais aussi avec l'humidité par grossissement de taille. En revanche, l'efficacité de diffusion augmente sensiblement avec RH car l'effet de croissance hygroscopique est dominant pour la diffusion par rapport à la diminution de la partie réelle de l'indice. Le pic correspondant au maximum d'efficacité est décalé vers la gauche, car le grossissement par humidification d'une particule de rayon sec plus petit aura la même efficacité de diffusion qu'une particule sèche légèrement plus grosse, malgré un indice de réfraction plus faible.

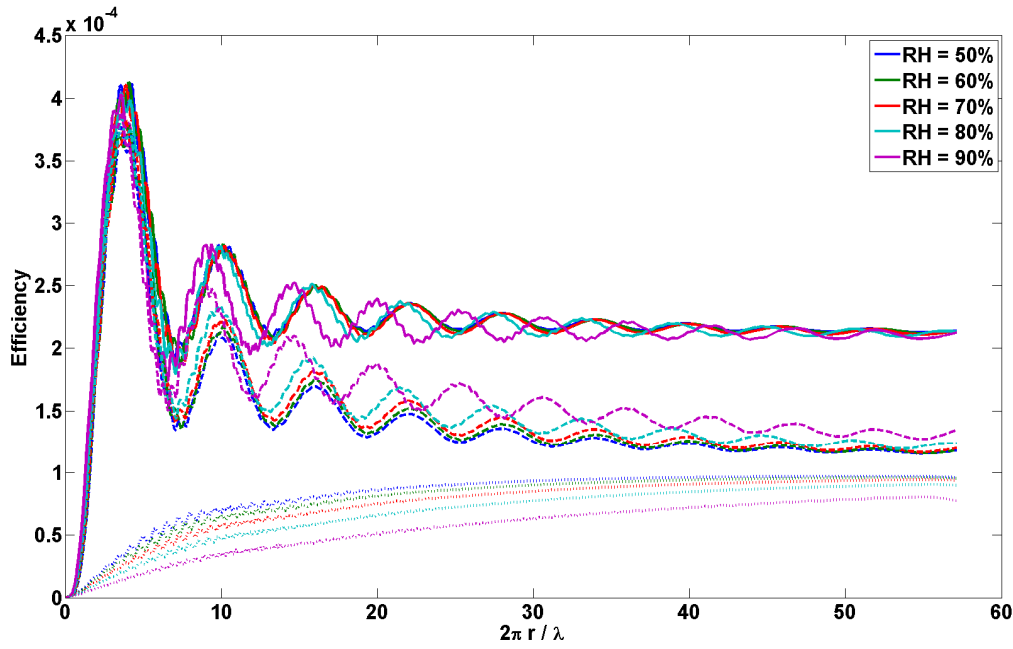


Fig 2.10 : Efficacités d'extinction (trait plein), de diffusion (tirets) et d'absorption (pointillés) en fonction du paramètre de taille obtenues par application de la théorie de Mie sur une particule unique d'indice sec  $1.53-0.02i$  à 550 nm pour différentes valeurs d'humidité relative. Le coefficient  $\varepsilon$  vaut 0.26 (Randriamiarisoa, 2006).

Hänel (1976) a également proposé une paramétrisation pour le facteur de croissance du coefficient de diffusion, généralement appliquée à la partie montante du cycle en hystérésis (à partir d'une humidité de référence  $RH_{ref}$ ) et qui a été utilisée par de nombreux auteurs (Kasten, 1969 ; Covert et al., 1972; Boucher and Anderson, 1995; Hegg et al., 1996 ; Ross et al., 1998; Kotchenruther and Hobbs, 1998 ; Kotchenruther et al., 1999 ; Gasso et al., 2000 ; Hegg et al., 2002 ; Nessler et al., 2005b ; Randriamiarisoa et al., 2006) :

$$\frac{\sigma_{scatt}(RH)}{\sigma_{scatt}(RH_{ref})} = \left( \frac{1 - RH}{1 - RH_{ref}} \right)^{-\gamma} \quad (2.69)$$

$\gamma$  est le coefficient de croissance d'Hänel du coefficient de diffusion. Au Chapitre 3, les relations définies par les Eq. 2.66, 2.68 et 2.69 seront appliquées aux aérosols urbains mesurés dans Paris. Cependant d'autres équations empiriques sont utilisées par d'autres chercheurs (Kotchenruther and Hobbs, 1998 ; Kotchenruther et al., 1999 ; Carrico et al., 2003) afin de « coller » à leurs propres jeux de données :

$$\frac{\sigma_{scatt}(RH)}{\sigma_{scatt}(RH_{ref})} = 1 + b \cdot (RH)^{-c} \quad (2.70)$$

$$\frac{\sigma_{scatt}(RH)}{\sigma_{scatt}(RH_{ref})} = b \cdot (1 - RH)^{-c} \quad (2.71)$$

Ces modèles ne reproduisent pas convenablement la croissance sur la courbe de déliquescence. Kotchenruther et al. (1999) et Carrico et al. (2003) ont ainsi proposé un modèle plus complexe permettant de résoudre ce problème :

$$\frac{\sigma_{scatt}(RH)}{\sigma_{scatt}(RH_{ref})} = (1 + a \cdot RH^b) \cdot \left\{ 1 - \frac{1}{\pi} \cdot \left[ \frac{\pi}{2} + \arctan(10^{24} \cdot (RH - d)) \right] \right\} + c \cdot (1 - RH)^{-g} \cdot \left\{ \frac{1}{\pi} \cdot \left[ \frac{\pi}{2} + \arctan(10^{24} \cdot (RH - d)) \right] \right\} \quad (2.72)$$

Notons enfin que la dépendance en RH de  $\sigma_{abs}$  est plus difficile à déterminer expérimentalement car la diminution de  $n_i$  avec l'augmentation de RH peut se traduire par une baisse du pouvoir absorbant de l'aérosol. Le Tableau 2.4 recense les principaux facteurs d'humification des propriétés optiques de l'aérosol comme les coefficients de diffusion (terme de droite de l'Eq. 2.69), d'absorption ou de rétrodiffusion atmosphérique, et de leur forçage radiatif direct.

## 2. Des propriétés microphysiques à l'interaction avec le rayonnement

Tableau 2.4: Facteurs d'humidification  $x(RH)/x(\sim 20\%)$  des propriétés optiques  $x$  de l'aérosol et de son forçage radiatif direct  $x$  reportés dans la littérature.

Facteur de croissance $x$	RH (%)	$x(RH)/x(\sim 20\%)$	Type d'aérosol / site	Références
Coefficient de diffusion	80	3.4	SS en laboratoire	Covert et al. (1972)
	80	2.2	(NH <sub>4</sub> ) <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> en laboratoire	Covert et al. (1972)
	80	2	Seattle	Covert et al. (1972)
	75 - 78	$1.7 \pm 0.3$	Sulfates, moyenne globale	Charlson et al. (1991)
	80	4	(NH <sub>4</sub> ) <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> modèle	Boucher and Anderson (1995)
	80	2.52	NH <sub>4</sub> HSO <sub>4</sub> modèle	Boucher and Anderson (1995)
	80	$2.0 \pm 0.2$	marin, Cape Grim	Carrico et al. (1998)
	80	$2.5 \pm 0.2$	marin, Tasmanie	Carrico et al. (1998)
	80	1.1 – 1.4	Feux de biomasse, Pantanal, Brazil	Ross et al. (1998)
	80	1.1 – 1.4	Feux de biomasse	Kotchenruther and Hobbs (1998)
	80	2.09	Marin + influences anthropiques Côte Atlantique des USA	Kotchenruther et al. (1999)
	80	$2.03 \pm 0.3$	Marin Côte de Californie	Kotchenruther et al. (1999)
	80	1.4	Marin + pollution Sagres, Portugal	Gasso et al. (2000)
	80	1.8	marin Sagres, Portugal	Gasso et al. (2000)
	80	$1.5 \pm 0.1$	Pollué, Sagres, Portugal	Carrico et al. (2000)
	80	2.2	Anthropique avec influence marine Thessaloniki, Greece	Chazette and Liousse (2001)
	82.5	1.4 – 1.5	Bonville, Illinois	Koloutsou-Vakakis (2001)
	80	1.1 - 4	Forte fraction soluble, Saclay, France	Randriamiarisoa et al. (2006)
Coefficient de rétrodiffusion hémisphérique	80	$1.2 \pm 0.1$	Pollué, Sagres, Portugal	Carrico et al. (2000)
	82.5	1.1 – 1.2	Bonville, Illinois	Koloutsou-Vakakis (2001)
Coefficient d'absorption	80	1.07 – 1.15	Distribution lognormale monomodale	Redemann et al. (2001)
	90	1.11 – 1.35	Distribution lognormale monomodale	Redemann et al. (2001)
	99	0.94 – 1.78	Été, site typique à basse troposphère libre	Nessler et al. (2005b)
	99	0.84 – 1.54	Hiver, site typique à basse troposphère libre	Nessler et al. (2005b)
Forçage radiatif direct de l'aérosol	80	$1.45 \pm 0.01$	Caroline du Nord, USA	Kotchenruther et al. (1999)
	80	2.0	Marin, Caroline du Nord, USA	Kotchenruther et al. (1999)
	80	1.46	Masse d'air polluée	Im et al. (2001)
	80	1.44	Aérosols continentaux	Im et al. (2001)

L'influence de la croissance hygroscopique des particules sur le forçage radiatif direct dans la CLA est significative (Charlson et al., 1992 ; Kotchenruther and Hobbs, 1998 ; Kotchenruther et al., 1999 ; Im et al., 2001). Ces considérations sont également importantes pour comprendre la cause de la dégradation de la visibilité par les particules (White and Roberts, 1977; Tang et al., 1981; Malm et al., 2003). Lorsque l'on utilise le lidar pour détecter à distance ces propriétés dans la CLA, comme cela est réalisé dans cette thèse, une description précise de cet effet est donc requise lorsque RH subit un cycle journalier significatif.

### 2.4.2 Asphéricité des aérosols

L'étude des aérosols est souvent simplifiée par l'utilisation de la théorie de Mie qui considère que les particules sont sphériques. Cette théorie a ainsi été utilisée pour fournir les résultats présentés dans les figures de la Sect. 2.3. Toutefois les équations présentées dans la Sect. 2.3 ne requièrent pas cette hypothèse ; elles supposent seulement que les particules sont orientées aléatoirement et possèdent un indice de réfraction homogène. L'approximation de sphéricité peut être parfois très éloignée de la réalité, et est mise en défaut dans le cas de sels secs (sulfates secs, nitrates, sels de mer), de poussières désertiques ou de particules carbonées, ces dernières se présentant sous forme de chaînes d'agglomérats. Martins et al. (1998) ont cependant montré que les propriétés optiques des suies issues de feux de biomasse au Brésil pouvaient être convenablement restituées avec l'hypothèse de sphéricité. Mais dans la plupart des cas, la description de la forme des aérosols est très délicate car souvent très variable et complexe, comme le suggèrent les images obtenues par microscopie électronique (Fig. 2.11).

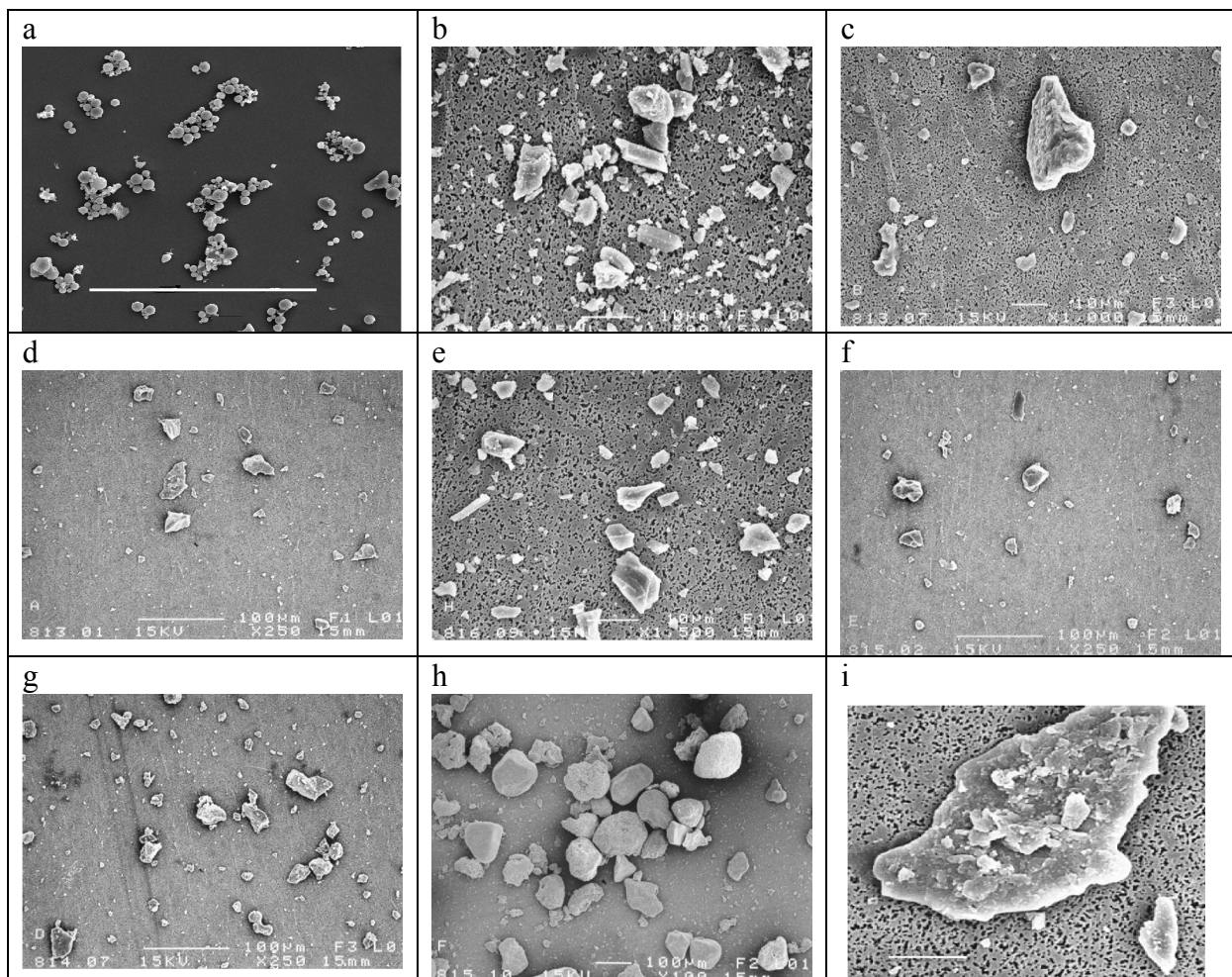


Fig. 2.11 : Images obtenues au MEB (microscope électronique à balayage) pour différents échantillons : (a) cendres volantes inorganiques produites par combustion de charbon, (b) feldspath, (c) claie rouge, (d) quartz, (e) cendre volcanique du Pinatubo, (f) loess, (g) cendre volcanique du Lokon, (h) sable du Sahara, et (i) particule de quartz isolée. La longueur de la barre blanche correspond à 10  $\mu\text{m}$  en (b), (c), (e), (h) et 100  $\mu\text{m}$  ailleurs. Sources : Volten et al. (2001), Munoz et al. (2000).

Mishchenko et al. (2000) ont effectué un inventaire des différentes techniques analytiques ou numériques, exactes ou approchées, permettant de calculer la diffusion électromagnétique par des particules de formes asphériques. Les auteurs distinguent trois types de méthodes. Les méthodes différentielles calculent le champ diffusé en résolvant les équations de Maxwell ou de l'onde vectorielle avec des conditions aux limites appropriées, dans le domaine temporel ou fréquentiel. Les méthodes intégrales sont basées sur les pendants des équations de Maxwell intégrés en volume ou en surface ; les conditions aux limites sont incluses automatiquement dans la solution. Une troisième catégorie de méthodes comprend les techniques hybrides et les méthodes qui peuvent être développées en utilisant différentes approches.

L'approximation de l'optique géométrique par les lois de Fresnel (ou suivi de rayons, « ray-tracing ») et l'approximation de diffraction anormale ne pouvant s'appliquer aux aérosols, qui ont des tailles comparables à la longueur d'onde dans le spectre solaire, on peut en revanche citer les méthodes de conditions aux limites étendues (EBCM) (Mugnai et Wiscombe, 1980), la méthode de séparation des variables sphéroïdales (Oguchi, 1973; Asano and Yamamoto, 1975 ; Voshchinnikov and Farafonov, 1993) pour résoudre analytiquement l'équation scalaire de Helmholtz en coordonnées sphéroïdales, la méthode des éléments finis pour résoudre numériquement l'équation vectorielle de Helmholtz (Morgan and Mei, 1979; Silvester and Ferrari, 1996), la méthode FDTD pour « Finite Difference Time Domain » (Yee, 1966; Yang and Liou, 1998), la méthode de « Point-matching » (Oguchi, 1973), ou encore la méthode de l'approximation en dipôles discrets (DDA) (Purcell and Pennypacker, 1973; Draine and Goodman, 1993 ; Mulholland et al., 1994). La méthode la plus connue et la plus utilisée pour calculer la diffusion électromagnétique par des ensembles de particules non sphériques distribuées aléatoirement est dite de la « T-matrice », développée par Waterman (1965). Cette approche est basée sur une matrice de transition qui sert de lien entre les développements en ondes sphériques vectorielles de l'onde incidente et de l'onde diffusée. Cette matrice est généralement calculée à partir d'une méthode EBCM basée sur le principe d'Huygens. L'avantage fondamental de cette approche est que la matrice de transition ne dépend que des propriétés géométriques (taille, forme, orientation) et de l'indice de réfraction de la particule, en étant indépendante des champs incident et diffusé, en particulier de leur direction et de leur polarisation. Elle permet de calculer les propriétés optiques pour des particules présentant une symétrie de rotation (Fig. 2.12), comme des sphéroïdes (oblates et prolates), des cylindres, ou des particules de Chebyshev (Mishchenko et al., 1997). La méthode est précise et rapide, mais elle ne permet de prendre que certains types de particules et pour des paramètres de taille inférieurs à 30.



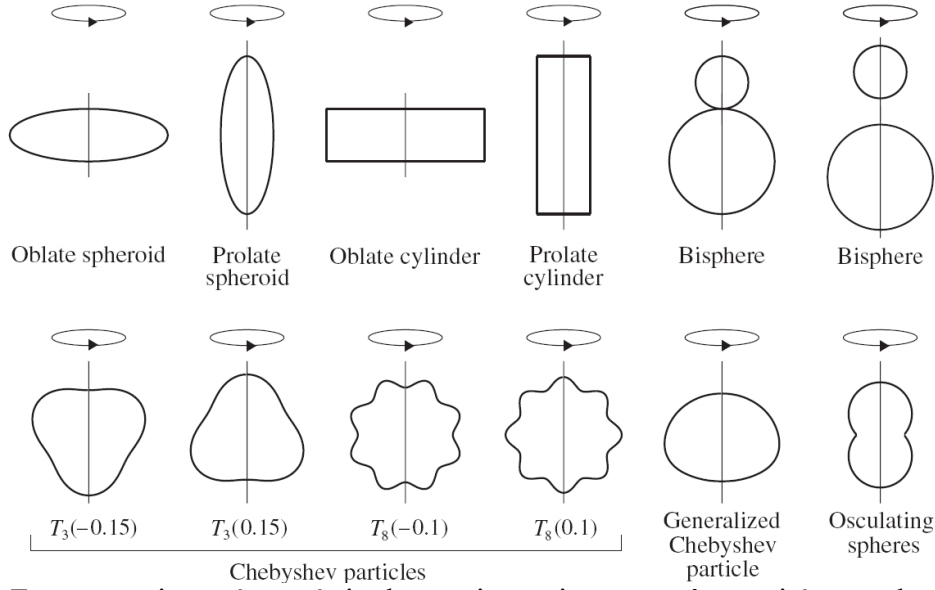


Fig. 2.12 : Formes typiques à symétrie de rotation qui peuvent être traitées par la méthode de la « T-matrice ». Source : Mishchenko et al. (2002).

Nous avons utilisé ce code pour évaluer les écarts que l'on peut attendre en supposant les particules de forme sphéroïdale par rapport à une distribution de particules sphériques. Un sphéroïde est une forme géométrique formée par la rotation d'une ellipse autour de son axe mineur (sphéroïde oblate) ou majeur (sphéroïde prolate) et est uniquement décrit par deux paramètres, que sont le rapport axial  $\zeta_a$  et le rayon  $r$  d'une sphère de volume équivalent, au lieu d'un seul pour les sphères.  $\zeta_a$  est le rapport entre la longueur de son axe de rotation et celle du plus grand axe perpendiculaire à cet axe de rotation. Il est donc supérieur à 1 pour les prolates et inférieur à 1 dans le cas des oblates. Le rapport d'aspect est parfois utilisé ; il est défini comme le rapport entre la plus grande et la plus petite dimension. Il est donc identique à  $\zeta_a$  pour les prolates et vaut son inverse dans le cas des oblates.

Les tests ont été réalisés à partir de la distribution en taille des poussières désertiques présentée en Fig. 2.3 et dont la fonction de phase a été calculée par Mie en Fig. 2.9. Pour les sphéroïdes, la distribution en taille devrait être une fonction des deux variables  $r$  et  $\zeta_a$ . Toutefois Mishchenko et al. (1997) ont montré que le modèle le plus simple avec une même distribution de  $\zeta_a$  pour les sphéroïdes de toutes tailles permettait de reproduire efficacement les fonctions de phase mesurées pour les poussières désertiques, ce qui est en accord avec les mesures in situ reportées par Reid et al. (2003) au Sahara. Il est alors possible de séparer les deux variables  $r$  et  $\zeta_a$  dans les intégrations (Dubovik et al., 2006), ce qui permet d'écrire au lieu des relations 2.53 et 2.54 :

$$\alpha_i(\lambda) = \sum_{m=1}^3 \left\{ x_m \cdot \int_f \left[ \frac{dn(\zeta_a^f)}{d\zeta_a} \cdot \int_0^\infty \left( G \cdot Q_i(r, \lambda, \zeta_a^f) \cdot \left( \frac{dN}{d \ln(r)} \right)_m \cdot \frac{1}{r} dr \right) \cdot d\zeta_a \right] \right\} \quad (2.73)$$

$$p(\theta, \lambda) = \frac{1}{\sigma_{scat}} \cdot \sum_{m=1}^3 \left\{ x_m \cdot \int_f \left[ \frac{dn(\zeta_a^f)}{d\zeta_a} \cdot \int_0^\infty \left( G \cdot Q_{scat}(r, \lambda, \zeta_a^f) \cdot P_{11}(r, \theta, \zeta_a^f) \cdot \left( \frac{dN_n}{d \ln(r)} \right)_m \cdot \frac{1}{r} dr \right) \cdot d\zeta_a \right] \right\} \quad (2.74)$$

où  $i$  désigne ext, abs ou scat, et  $m$  l'indice du mode dans la distribution en taille.  $dn(\zeta_a^f)/d\zeta_a$  est la distribution des rapports axiaux supposée identique pour toutes les tailles d'aérosols.

Nous avons codé ces équations pour estimer l'effet lié à la forme des particules orientées aléatoirement en utilisant le code de la « T-matrix » pour simuler les facteurs d'efficacité  $Q_i$ . D'après Mishchenko et al.(1997), les valeurs moyennes de rapport d'aspect obtenues par différentes techniques se situent entre 1.7 et 2.0. Nous avons donc choisi pour les calculs de simuler un mélange de sphéroïdes caractérisé par une distribution uniforme  $dn(\zeta_a^f)/d\zeta_a$ , avec des prolates ayant des rapports axiaux  $\zeta_a$  de 1.7 et 2 et des oblates ayant des rapports axiaux de 0.5 et 0.59 ( $=1/1.7$ ). L'utilisation du code « T-Matrice » nous a permis d'obtenir la Fig. 2.13

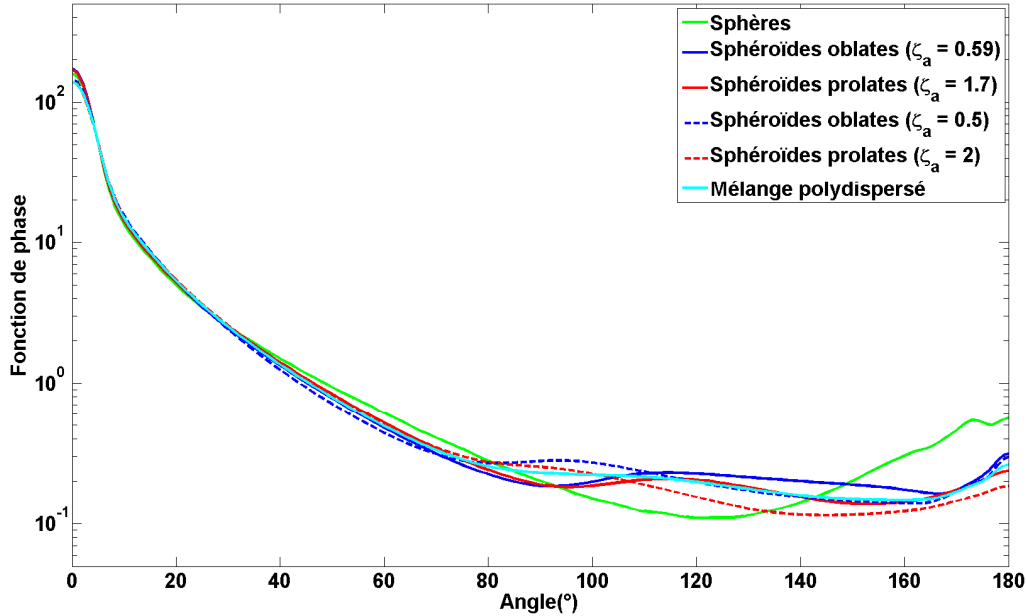


Fig. 2.13 : Fonctions de phase simulées par l'algorithme de la « T-matrice » pour des sphères ( $\zeta_a=1$ ), pour des sphéroïdes orientés aléatoirement de rapport axial unique de 4 valeurs différentes, et pour un mélange polydispersé d'oblates et de prolates ayant un rapport d'aspect de 1.7 ou 2 indépendant de la taille. Toutes les simulations ont été réalisées à partir de la distribution en taille présentée en Fig. 2.3, et pour un indice de réfraction de  $1.53-0.008i$  (Chapitre 6).

Il est d'abord utile de remarquer que la fonction de phase simulée pour une distribution en taille de sphères par la « T-matrice » est très similaire à celle qui avait été obtenue par la théorie de Lorentz-Mie dans la Fig. 2.9. Plusieurs résultats importants peuvent également être extraits de la comparaison entre des particules asphériques et des sphères de volume équivalent. Pour des angles de diffusion inférieurs à  $20^\circ$  environ, le choix du modèle a peu d'influence. Autrement dit, la forme de la particule affecte peu le pic de diffusion avant. Ce domaine est en effet dominé par la diffraction qui dépend de la section efficace de la particule. C'est un point crucial, car les particules les plus grosses, qui sont souvent en même temps les plus asphériques, voient leurs propriétés de diffusion majoritairement gouvernées par la diffusion avant. Ceci minimise donc le rôle de la non-sphéricité des aérosols sur leur impact radiatif. Le reste de la fonction de phase est davantage affecté par la morphologie des particules. Ainsi, pour les angles de diffusion compris entre  $30^\circ$  et  $150^\circ$  (diffusion de côté), la fonction de phase est alternativement plus importante pour les particules sphériques (entre  $30^\circ$  et  $80^\circ$ ), puis pour les particules sphéroïdales (entre  $80^\circ$  et  $150^\circ$ ). Ces résultats sont en accord avec ceux obtenus par Dubovik et al. (2006) pour des poussières sahariennes. En particulier,

le minimum large et bien marqué dans la diffusion par les particules sphériques autour de  $120^\circ$  n'est pas présent sur les fonctions de phase des sphéroïdes, et ce quelque soit le rapport axial considéré. Les différents modèles de sphéroïdes étudiés ont un comportement diffusif assez proche, même si, pour un même rapport d'aspect, les oblates semblent diffuser légèrement plus sur les angles latéraux que les prolates. La fonction de phase du mélange dispersé peut donc être considérée comme suffisamment représentative de la diffusion par les aérosols caractérisés par la distribution en taille typique de poussières minérales. Les particules sphériques diffusent donc la lumière de façon très différente des autres formes, comme le suggéraient déjà les conclusions de Mugnai et Wiscombe (1989). Enfin, l'impact de l'asphéricité des aérosols se fait essentiellement ressentir entre  $170$  et  $180^\circ$ . La gloire ou anti-couronne qui caractérise la rétrodiffusion de la lumière par les particules sphériques est atténuée dans le cas de particules sphéroïdales : le pic de rétrodiffusion est ainsi moins marqué. Cependant, les écarts importants observés en rétrodiffusion ont très peu d'impact sur la détermination des propriétés optiques intégrées, comme l'indique le Tableau 2.5.

Tableau 2.5 : Sections efficaces de d'extinction, de diffusion, d'absorption et albedo de simple diffusion obtenus par l'algorithme de la « T-matrice » pour des sphères ( $\zeta_a=1$ ), pour des sphéroïdes orientés aléatoirement de rapport axial unique de 4 valeurs différentes, et pour un mélange polydispersé d'oblates et de prolates ayant un rapport d'aspect de 1.7 ou 2 indépendant de la taille. Toutes les simulations ont été réalisées à partir de la distribution en taille présentée en Fig. 2.3, et pour un indice de réfraction de  $1.53-0.008i$  (Chapitre 6). Les chiffres entre parenthèses indiquent les différences relatives par rapport aux aérosols sphériques.

	$\sigma_{\text{ext}} (\text{cm}^2)$	$\sigma_{\text{scat}} (\text{cm}^2)$	$\sigma_{\text{abs}} (\text{cm}^2)$	$\omega_0$
Sphères	$1.43 \times 10^{-9}$	$1.23 \times 10^{-9}$	$2.02 \times 10^{-10}$	0.859
Oblates $\zeta_a=0.59$	$1.49 \times 10^{-9}$ (4%)	$1.28 \times 10^{-9}$ (4%)	$2.14 \times 10^{-10}$ (6%)	0.857 (0%)
Prolates $\zeta_a=1.7$	$1.49 \times 10^{-9}$ (4%)	$1.28 \times 10^{-9}$ (4%)	$2.10 \times 10^{-10}$ (4%)	0.859 (0%)
Oblates $\zeta_a=0.5$	$1.47 \times 10^{-9}$ (3%)	$1.28 \times 10^{-9}$ (4%)	$1.94 \times 10^{-10}$ (4%)	0.868 (1%)
Prolates $\zeta_a=2$	$1.46 \times 10^{-9}$ (2%)	$1.27 \times 10^{-9}$ (3%)	$1.89 \times 10^{-10}$ (6%)	0.871 (1%)
Mélange de sphéroïdes	$1.44 \times 10^{-9}$ (1%)	$1.25 \times 10^{-9}$ (2%)	$1.90 \times 10^{-10}$ (6%)	0.868 (1%)

On observe que la différence entre les propriétés optiques intégrées calculées sur la distribution en taille pour des sphères ou pour des sphéroïdes est minime, que l'on considère des prolates ou des oblates. Notons que le cas de particules sphériques correspond à un minimum pour les sections efficaces de diffusion et d'extinction. Les écarts sont encore plus faibles pour un mélange de sphéroïdes polydispersé avec des rapports axiaux indépendants de la taille des aérosols. Ceci est en accord avec les conclusions de Mishchenko et al. (1997) qui ont montré que la moyenne des propriétés optiques obtenues pour différents rapports d'aspect avait tendance à se rapprocher du cas sphérique. Or ces faibles différences sont encore atténuées lorsque les particules sont plus fines (bonne application de la théorie de Mie) ou lorsque les particules sont vieilles. En raison de processus de condensation et de mélange qui prennent de l'ampleur avec un temps de résidence des aérosols plus grand, les propriétés optiques des poussières sahariennes tendent vers celles des sphères avec l'âge (Koepke et Hess, 1988). Enfin, l'absorption permet aussi de réduire les différences entre les fonctions de phase (Fig. 2.14).

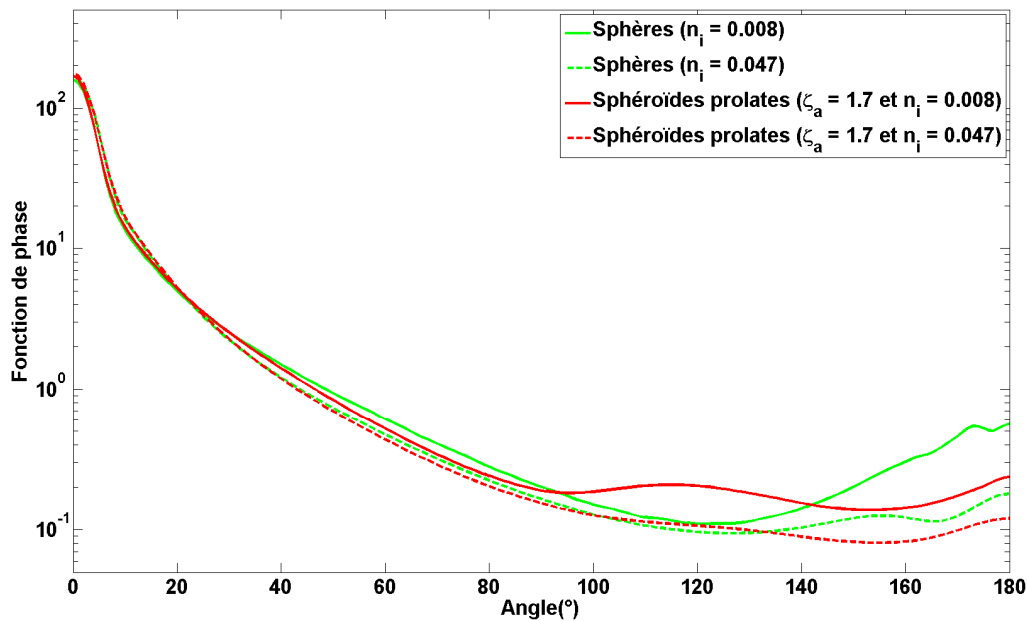


Fig. 2.14 : Fonctions de phase simulées par l'algorithme de la « T-matrice » pour des sphères ( $\zeta_a=1$ ), pour des sphéroïdes orientés aléatoirement de rapport axial unique 1.7 indépendant de la taille. Toutes les simulations ont été réalisées à partir de la distribution en taille présentée en Fig. 2.3, et pour un indice de réfraction de partie réelle 1.53 et de partie imaginaire 0.008 (poussières désertiques) ou 0.047 (feux de biomasse). Le rayon efficace de la distribution en taille vaut 0.9, et le paramètre de taille associé 10.

La Fig. 2.14 illustre le fait qu'une augmentation de  $n_i$  diminue les écarts entre aérosols sphériques et asphériques. Mishchenko and Travis (1994) et Mishchenko et al. (1997) ont même montré que les différences peuvent s'annuler lorsque la partie imaginaire est encore plus importante. Ceci peut s'expliquer par les phénomènes de diffraction et de réflexion externe qui dominent les processus de diffusion dans le cas de larges particules (paramètre de taille efficace de 10 dans notre simulation). Ces phénomènes sont en effet identiques pour des sphères larges et des sphéroïdes de taille équivalente orientés aléatoirement (Van de Hulst, 1957 ; Van de Hulst, 1980).

Comme nous l'avons vu, il est possible de tenir compte de la forme des aérosols de façon théorique. Dans la réalité, comme nous le verrons au Chapitre 6, les données sont souvent insuffisantes pour modéliser rigoureusement la forme des aérosols et connaître la représentativité effective de la morphologie obtenue dans un échantillon. Les distributions de formes couplées aux distributions de taille sont donc souvent inconnues et limitent l'approche par des temps de calcul significativement plus longs. Les évaluations que nous avons effectuées ici dans des cas plutôt défavorables (particules larges, non absorbantes et de rapports axiaux déterminés) permettent de garantir que la théorie de Mie ne s'écartera pas sensiblement de la réalité. Les écarts observés sur les propriétés optiques intégrées par rapport au modèle sphérique sont faibles, surtout si l'on considère un mélange de particules asphériques (<2% pour la diffusion, l'extinction et  $\omega_0$ ). Ainsi la méthode de détermination des indices décrite au Chapitre 4 et qui repose principalement sur la connaissance de la section efficace de diffusion et de l'albédo de simple diffusion pourra s'appuyer de façon fiable sur la théorie de Mie, même si les particules présentent une asphéricité (Chapitre 6).

## 2.5 La diffusion multiple : équation de transfert radiatif

### 2.5.1 Equation différentielle du transfert radiatif

L'équation de transfert radiatif exprime la variation infinitésimale de flux subie lors de la traversée d'une épaisseur infinitésimale  $ds$  du milieu. Comme nous l'avons vu à la Sect. 2.3.3, c'est la relation de Beer-Bouguer-Lambert (Eq. 2.58) qui permet d'exprimer le rayonnement perdu par absorption et par diffusion. D'autre part, l'intensité du rayonnement peut être renforcée dans sa direction d'incidence définie par l'angle solide  $\Omega$  (qui dépend de l'angle zénithal  $\theta$  et de l'angle azimutal  $\phi$ ) par deux processus, la diffusion en provenance de toutes les autres directions et l'émission thermique du milieu. On définit alors une fonction source  $J_\lambda$  qui est la somme de ces deux processus :

$$J_\lambda(s, \Omega) = J_\lambda^{em}(s, \Omega) + J_\lambda^{scat}(s, \Omega) \quad (2.75)$$

$J_\lambda^{em}$  est la fonction source d'émission, et  $J_\lambda^{scat}$  la fonction source de diffusion. Cela permet alors d'écrire l'équation différentielle du transfert radiatif, appelée équation de Schwarzschild :

$$\frac{dL_\lambda(s, \Omega)}{ds} = -\alpha_{ext}(\lambda, s) \cdot (L_\lambda(s, \Omega) - J_\lambda(s, \Omega)) \quad (2.76)$$

Pour de nombreuses applications, l'atmosphère peut être approximée par un modèle plan parallèle qui néglige la courbure de la Terre ainsi que les variations horizontales de paramètres géophysiques (température, pression, concentrations) et ne considère que la stratification verticale (fonction de la hauteur  $z$ ). Dans ce cas, la direction est définie par  $\mu = \cos(\theta)$  (Eq. 2.51) et on alors :

$$ds = \frac{dz}{\mu} \quad (2.77)$$

En introduisant l'épaisseur optique mesurée vers le bas depuis le sommet de l'atmosphère :

$$d\tau(\lambda) = -\alpha_{ext}(\lambda, z) \cdot dz \quad (2.78)$$

on obtient l'équation générale de transfert radiatif :

$$\mu \cdot \frac{dL_\lambda(\tau, \Omega)}{d\tau} = L_\lambda(\tau, \Omega) - J_\lambda(\tau, \Omega) \quad (2.79)$$

La résolution de cette équation est complexe, nécessite de connaître les conditions aux limites et fait appel le plus souvent à des calculs numériques approchés. Néanmoins, en multipliant les deux membres par  $\exp(-\tau/\mu)$ , on peut réécrire l'Eq. 2.79 sous la forme :

$$\frac{d}{d\tau} \left( L_\lambda(\tau, \Omega) \cdot \exp\left(-\frac{\tau}{\mu}\right) \right) = -\frac{J_\lambda(\tau, \Omega)}{\mu} \cdot \exp\left(-\frac{\tau}{\mu}\right) \quad (2.80)$$

Cette équation peut être résolue en donnant les luminances montante  $L_\lambda^\uparrow$  et descendante  $L_\lambda^\downarrow$  pour une atmosphère finie, limitée par son sommet et la surface :

$$L_\lambda^\uparrow(\tau, \Omega) = L_\lambda^\uparrow(\tau_{sol}, \Omega) \cdot \exp\left(-\frac{\tau_{sol} - \tau}{\mu}\right) + \frac{1}{\mu} \cdot \int_\tau^{\tau_{sol}} \exp\left(-\frac{\tau' - \tau}{\mu}\right) \cdot J_\lambda^\uparrow(\tau', \Omega) \cdot d\tau' \quad (2.81)$$

avec  $\mu > 0$  et  $\tau_{sol}$  l'épaisseur optique après toute sa traversée de l'atmosphère jusqu'au sol,

$$L_{\lambda}^{\downarrow}(\tau, \Omega) = L_{\lambda}^{\downarrow}(0, \Omega) \cdot \exp\left(\frac{\tau}{\mu}\right) - \frac{1}{\mu} \cdot \int_0^{\tau} \exp\left(-\frac{\tau' - \tau}{\mu}\right) \cdot J_{\lambda}^{\downarrow}(\tau', \Omega) \cdot d\tau' \quad (2.82)$$

avec  $\mu < 0$ .

La connaissance de la fonction source  $J_{\lambda}$  est nécessaire pour résoudre l'équation de transfert radiatif. Dans le cas général, la fonction source est constituée par l'émission thermique et la diffusion (ou l'émission par diffusion), dépend de la position et de la direction et est très complexe. On peut considérer que la résolution de l'équation de transfert radiatif se réduit à la détermination de la fonction source.

### 2.5.2 Fonctions sources et équation intégral-différentielle du transfert radiatif

Le membre de gauche de cette équation désigne la variation de la luminance le long de la trajectoire du faisceau lumineux considéré. L'origine de cette variation est donnée dans le second membre qui dépend des propriétés optiques des constituants du milieu étudié et du domaine spectral.

Comme tout corps gris porté à la température  $T$ , le milieu rayonne. La troposphère est considérée à l'ETL (équilibre thermodynamique local), c'est-à-dire que l'émission spontanée des molécules peut être négligée devant l'émission due aux collisions entre les molécules. Cette dernière, appelée émission thermique, n'est contrôlée que par la température, et le rayonnement émis par chaque couche peut s'écrire, grâce à la fonction de Planck  $B^{\lambda}(T)$  :

$$J_{\lambda}^{em}(\tau, \Omega) = \varepsilon^{em}(\lambda, \tau) \cdot B_{\lambda}(T(\tau)) \quad (2.83)$$

avec :

$$B_{\lambda}(T) = \frac{2hc^2}{\lambda^5 \cdot \left[ \exp\left(\frac{hc}{k_B T \lambda}\right) - 1 \right]} \quad (2.84)$$

où  $h$  désigne la constante de Planck et  $k_B$  la constante de Boltzmann. D'après la loi de Kirchhoff, l'émissivité  $\varepsilon^{em}$  peut aussi s'écrire :

$$\varepsilon^{em}(\lambda, \tau) = (1 - \omega_0(\lambda, \tau)) \quad (2.85)$$

$\omega_0$  désigne l'albédo de simple diffusion équivalent de la couche à la position  $s$  caractérisée par une épaisseur optique  $\tau$  à la longueur d'onde  $\lambda$ . La fonction source d'émission s'écrit donc :

$$J_{\lambda}^{em}(\tau, \Omega) = (1 - \omega_0(\lambda, \tau)) \cdot B_{\lambda}(T) \quad (2.86)$$

Le terme source de diffusion est plus complexe car il dépend des directions et des états de polarisation, et implique des conditions tout au long du trajet dans l'atmosphère, contrairement à la fonction de source thermique qui ne dépend que des conditions locales. La fonction source de diffusion est généralement séparée en deux contributions étant donné la discontinuité imposée par la condition à la limite. Une première partie vient de la diffusion simple du rayonnement solaire incident  $F_0$  de direction incidente  $\Omega_0(\mu_0, \varphi_0)$ , atténué par l'atmosphère. Une deuxième représente le rayonnement diffus composé des photons qui rejoignent la direction de propagation  $\Omega$  après une diffusion multiple du reste de l'espace. On peut alors écrire :

$$J_{\lambda}^{scat}(\tau, \Omega) = \frac{\varpi_0(\lambda, \tau)}{4\pi} \cdot F_0 \cdot p(\tau, \Omega, \Omega_0) \cdot \exp\left(\frac{\tau}{\mu_0}\right) + \frac{\varpi_0(\lambda, \tau)}{4\pi} \cdot \int_{\Omega'} L_{\lambda}(\tau, \Omega') \cdot p(\tau, \Omega, \Omega') \cdot d\Omega' \quad (2.87)$$

où  $F_0$  est la luminance solaire avec  $\mu_0 < 0$ . La fonction de phase  $p(\tau, \Omega, \Omega')$  est définie par l'Eq. 2.54 et exprime la probabilité, à  $4\pi$  près, pour qu'un photon se propageant suivant la direction  $\Omega'(\mu', \varphi')$  soit diffusé dans la direction  $\Omega(\mu, \varphi)$ . Notons que l'angle de diffusion  $\Theta$  impliqué dans l'Eq. 2.54 désigne l'angle entre la direction incidente et la direction du rayonnement diffusé. Son cosinus vaut alors :

$$\cos(\Theta) = \mu \cdot \mu' + (1 - \mu^2)^{\frac{1}{2}} \cdot (1 - \mu'^2)^{\frac{1}{2}} \cdot \cos(\varphi' - \varphi) \quad (2.88)$$

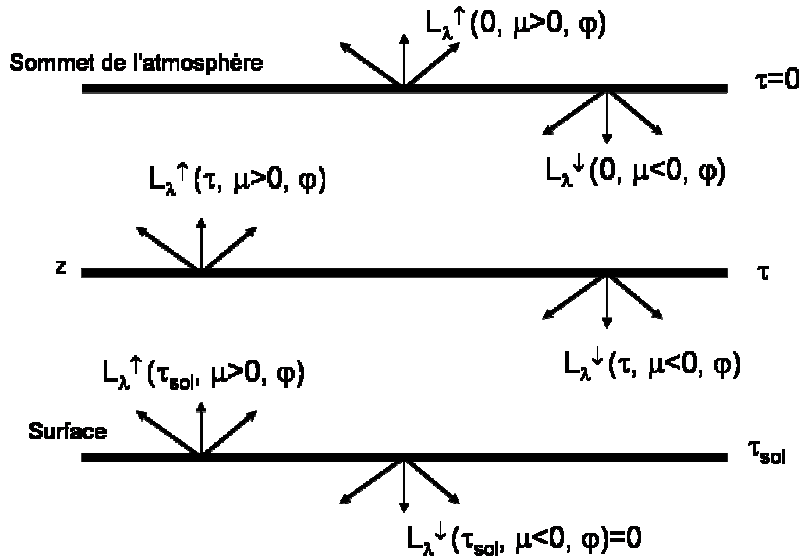


Fig. 2.15 : Représentation des luminances montante et descendante dans une atmosphère plan parallèle.

L'équation de transfert radiatif peut finalement s'écrire sous forme intégral-différentielle :

$$\begin{aligned} \mu \cdot \frac{dL_{\lambda}(\tau, \Omega)}{d\tau} = & L_{\lambda}(\tau, \Omega) \\ & - \frac{\varpi_0(\lambda, \tau)}{4\pi} \cdot F_0 \cdot p(\tau, \Omega, \Omega_0) \cdot \exp\left(\frac{\tau}{\mu_0}\right) - \frac{\varpi_0(\lambda, \tau)}{4\pi} \cdot \int_{\Omega'} L_{\lambda}(\tau, \Omega') \cdot p(\tau, \Omega, \Omega') \cdot d\Omega' \\ & - (1 - \varpi_0(\lambda, \tau)) \cdot B_{\lambda}(T) \end{aligned} \quad (2.89)$$

Le membre de gauche de cette équation désigne la variation de la luminance le long de la trajectoire du faisceau lumineux considéré. L'origine de cette variation est donnée dans le second membre qui dépend des propriétés optiques des constituants du milieu étudié et du domaine spectral. L'équation intégrale fournit la luminance monochromatique en un point  $s$  en se propageant dans une direction donnée  $\Omega$  (souvent appelée solution élémentaire). Une distribution générale complète de la luminance sur les angles et les longueurs d'onde peut être obtenue en répétant la solution élémentaire sur tous les rayons incidents et toutes les longueurs d'onde. Dans cette thèse, nous travaillons dans les domaines UV et visible. Il est alors possible d'omettre le terme de la fonction source d'émission.

### 2.5.3 Approximation de la diffusion primaire

Dans le cas d'une atmosphère optiquement fine, c'est-à-dire de faible épaisseur optique, il est possible de faire l'approximation de la diffusion primaire. On néglige alors le terme de rayonnement diffus dans le terme source de diffusion. En utilisant les Eq. 2.81 et 2.82, les luminances montante et descendante s'écrivent alors :

$$L_{\lambda}^{\uparrow}(\tau, \Omega) = L_{\lambda}^{\uparrow}(\tau_{sol}, \Omega) \cdot \exp\left(-\frac{\tau_{sol} - \tau}{\mu}\right) + \frac{\varpi_0(\lambda, \tau)}{4\pi} \cdot F_0 \cdot p(\tau, \Omega, \Omega_0) \cdot \frac{1}{\mu} \cdot \int_{\tau}^{\tau_{sol}} \exp\left(-\frac{\tau' - \tau}{\mu} + \frac{\tau'}{\mu_0}\right) \cdot d\tau' \quad (2.90)$$

$$L_{\lambda}^{\downarrow}(\tau, \Omega) = L_{\lambda}^{\downarrow}(0, \Omega) \cdot \exp\left(\frac{\tau}{\mu}\right) - \frac{\varpi_0(\lambda, \tau)}{4\pi} \cdot F_0 \cdot p(\tau, \Omega, \Omega_0) \cdot \frac{1}{\mu} \cdot \int_0^{\tau} \exp\left(-\frac{\tau' - \tau}{\mu} + \frac{\tau'}{\mu_0}\right) \cdot d\tau' \quad (2.91)$$

En supposant qu'il n'y a pas de rayonnement diffusé descendant au sommet de l'atmosphère, et pas de rayonnement diffusé montant à la surface (c'est-à-dire pas de réflexion à la surface) :

$$L_{\lambda}^{\downarrow}(0, \Omega) = 0 \quad (2.92)$$

$$L_{\lambda}^{\uparrow}(\tau_{sol}, \Omega) = 0 \quad (2.93)$$

Alors pour une atmosphère finie d'épaisseur optique  $\tau_{sol}$ , nous avons directement les luminances diffusées réfléchies et transmises :

$$L_{\lambda}^{\uparrow}(0, \Omega) = \frac{\varpi_0(\lambda, \tau) \cdot \mu_0 \cdot F_0}{4\pi \cdot (\mu_0 - \mu)} \cdot p(\Omega, \Omega_0) \cdot \left[ 1 - \exp\left(\tau_{sol} \cdot \left(\frac{1}{\mu_0} - \frac{1}{\mu}\right)\right) \right] \quad (2.94)$$

pour  $\mu_0 < 0$ ,

$$L_{\lambda}^{\downarrow}(\tau_{sol}, \Omega) = \frac{\varpi_0(\lambda, \tau) \cdot \mu_0 \cdot F_0}{4\pi \cdot (\mu_0 - \mu)} \cdot p(\Omega, \Omega_0) \cdot \left[ \exp\left(\frac{\tau_{sol}}{\mu_0}\right) - \exp\left(\frac{\tau_{sol}}{\mu}\right) \right] \quad (2.95)$$

pour  $\mu_0 < 0$ ,  $\mu < 0$  et  $\mu_0 \neq \mu$ ,

$$L_{\lambda}^{\downarrow}(\tau_{sol}, \Omega) = -\frac{\varpi_0(\lambda, \tau) \cdot F_0}{4\pi \cdot \mu_0} \cdot p(\Omega, \Omega_0) \cdot \tau_{sol} \cdot \exp\left(\frac{\tau_{sol}}{\mu_0}\right) \quad (2.96)$$

pour  $\mu = \mu_0 < 0$ .

Dans l'approximation de diffusion primaire, les luminances diffusées sont donc directement proportionnelles à la fonction de phase.

### 2.5.4 Résolution numérique de l'équation de transfert radiatif

Dans le cas général, l'Eq. (2.89) ne possède pas de solution analytique. Plusieurs approches numériques, exactes ou approchées, ont été développées pour résoudre cette équation. Citons les méthodes à deux flux (e.g. Toon et al. 1989), la méthode des ordonnées discrètes



(Chandrasekhar, 1960), la méthode des ordres successifs de diffusion (Deuzé et al. 1989), l'adding-doubling (De Haan et al. 1986), ou encore et les méthodes dites de Monte Carlo (Marchuk et al., 1980) pour les nuages hétérogènes. Nous n'envisageons dans la suite de cette section que deux approches, car elles seront utilisées dans le Chapitre 6 de cette thèse : l'approximation de Delta-Eddington (Joseph, 1976) et la résolution exacte par la méthode des ordonnées discrètes.

### 2.5.4.1 Décomposition en polynômes de Legendre

L'équation de transfert radiatif plan parallèle est souvent résolue en décomposant la luminance en séries de Fourier en  $\varphi$  :

$$L_\lambda(\tau, \mu, \varphi) = \sum_{m=0}^N L_{\lambda,m}(\tau, \mu) \cdot \cos[m \cdot (\varphi_0 - \varphi)] \quad (2.97)$$

La fonction de phase est à son tour décomposée en harmoniques sphériques :

$$p(\mu, \varphi, \mu', \varphi') = \sum_{m=0}^N \sum_{l=m}^N w_l \cdot a_{l,m} \cdot P_l^m(\mu) \cdot P_l^m(\mu') \cdot \cos[m \cdot (\varphi' - \varphi)] \quad (2.98)$$

$$\text{où } a_{l,m} = (2 - \delta_{0,m}) \cdot \frac{(l-m)!}{(l+m)!} \quad (2.99)$$

$\delta$  désignant le symbole de Kronecker.

Les coefficients des séries de Legendre  $w_l$  sont définis par :

$$p(\mu) = \sum_{l=0}^N w_l \cdot P_l(\mu) \quad (2.100)$$

et :

$$w_l = \frac{2l+1}{2} \cdot \int_{-1}^1 p(\mu) \cdot P_l(\mu) \cdot d\mu \quad (2.101)$$

Les  $P_l$ ,  $l = 0, \dots, N$  sont les polynômes de Legendre.

En appliquant l'Eq. (2.89) à la composante de Fourier d'ordre  $m$ , on remarque que les polynômes de Legendre permettent de s'affranchir de la composante azimutale. Cela constitue la raison majeure de leur utilisation. On a alors pour  $m=0, \dots, N$  :

$$\begin{aligned} \mu \cdot \frac{dL_{\lambda,m}(\tau, \mu)}{d\tau} &= L_{\lambda,m}(\tau, \mu) - (1 + \delta_{0,m}) \cdot \frac{\varpi_0(\lambda, \tau)}{4} \cdot \sum_{l=m}^N a_{l,m} \cdot w_l \cdot P_l^m(\mu) \cdot \int_{-1}^1 P_l^m(\mu') \cdot I_m(\tau, \mu') \cdot d\mu' \\ &\quad - \frac{\varpi_0(\lambda, \tau)}{4\pi} \cdot \sum_{l=m}^N a_{l,m} \cdot w_l \cdot P_l^m(\mu) \cdot P_l^m(\mu_0) \cdot F_0 \cdot \exp\left(\frac{\tau}{\mu_0}\right) \end{aligned} \quad (2.102)$$

### 2.5.4.2 Méthodes à 2 flux, approximation de Delta-Eddington

Les méthodes à 2 flux, comme celle d'Eddington (Eddington, 1916), fournissent des solutions analytiques à l'équation de transfert radiatif dans une couche seule en modèle plan parallèle. De nombreuses méthodes dites à 2 flux permettent d'approximer le champ de luminance angulaire à partir de deux nombres (hémisphères constants  $L^\uparrow$  et  $L^\downarrow$ ; quadrature à deux points  $L(\mu_1)$  et  $L(\mu_{-1})$ ; 0<sup>ème</sup> et 1<sup>er</sup> moments d'Eddington). Ces méthodes ne sont généralement

précises que pour les flux. Toutefois, dans un processus en deux étapes, la 2<sup>e</sup> approximation d'Eddington permet l'obtention de luminances précises. Les méthodes à deux flux sont utilisées lorsque le temps de calcul est une priorité, comme dans les modèles climatiques.

L'idée sous-jacente à ces méthodes est de considérer que les détails de la variation angulaire des luminances ne sont pas très importants pour déterminer les flux radiatifs et les taux d'échauffement qui sont des propriétés moyennées sur les angles. L'Eq. 2.102 est d'abord moyennée sur la contribution azimutale, ce qui implique  $m=0$  :

$$\mu \cdot \frac{dL_\lambda(\tau, \mu)}{d\tau} = L_\lambda(\tau, \mu) - \frac{\varpi_0(\lambda, \tau)}{2} \cdot \int_{-1}^1 p(\mu, \mu') \cdot L_\lambda(\tau, \mu') \cdot d\mu' - \frac{\varpi_0(\lambda, \tau)}{4\pi} \cdot \sum_{l=0}^N w_l \cdot P_l(\mu) \cdot P_l(\mu_0) \cdot F_0 \cdot \exp\left(\frac{\tau}{\mu_0}\right) \quad (2.103)$$

où :

$$p(\mu, \mu') = \sum_{l=0}^N w_l \cdot P_l(\mu) \cdot P_l(\mu') \quad (2.104)$$

Le flux montant s'écrit :

$$F_\lambda^\uparrow(\tau) = 2\pi \int_0^1 L_\lambda(\tau, \mu) \cdot \mu \cdot d\mu \quad (2.105)$$

Une relation semblable est obtenue pour le flux descendant.

Dans l'approche d'Eddington, on approxime au 1<sup>er</sup> ordre en  $\mu$  le champ de luminance et la fonction de phase moyennés sur la composante azimutale, c'est-à-dire :

$$L_\lambda(\tau, \mu) = \sum_{l=0}^N L_{\lambda,l}(\tau) \cdot P_l(\mu) = L_{\lambda,0}(\tau) + L_{\lambda,1}(\tau) \cdot \mu \quad (2.106)$$

$$p(\mu, \mu') = \sum_{l=0}^N w_l \cdot P_l(\mu) \cdot P_l(\mu') = 1 + 3g\mu\mu' \quad (2.107)$$

Le terme  $L_{\lambda,0}$  est la composante isotrope du champ de luminance tandis que  $L_{\lambda,1}$  représente sa dépendance linéairement anisotrope. Les inconnues  $L_{\lambda,0}$  et  $L_{\lambda,1}$  sont obtenues en réécrivant l'Eq. 2.103) avec les approximations des Eq. 2.106 et 2.107.

Les flux diffus dans l'approximation d'Eddington valent :

$$F_\lambda^\uparrow(\tau) = \pi \cdot \left( L_{\lambda,0}(\tau) + \frac{2}{3} \cdot L_{\lambda,1}(\tau) \right) \quad (2.108)$$

$$F_\lambda^\downarrow(\tau) = \pi \cdot \left( L_{\lambda,0}(\tau) - \frac{2}{3} \cdot L_{\lambda,1}(\tau) \right) \quad (2.109)$$

L'intérêt de cette méthode par rapport à un modèle à 2 flux classique est que l'approximation au 1<sup>er</sup> ordre faite sur le champ de luminance et la fonction de phase permet de s'affranchir du problème de choix de quadrature.

Les méthodes à 2 flux et d'Eddington sont de bonnes approximations pour une couche d'épaisseur optique importante, mais elles peuvent conduire à des résultats imprécis pour les couches fines et fortement absorbantes. Le principal problème tient au fait que la fonction de phase est fortement piquée vers l'avant, et donc mal prise en compte dans le développement

en deux termes de la fonction de phase de diffusion (Eq. 2.107). Pour remédier à cela, un ajustement par fonction Delta est parfois opéré. Il permet de remplacer la fonction de phase fortement piquée par d'une part une fonction Delta dans la diffusion avant, et d'autre part une fonction de phase redimensionnée plus lisse. On ajuste ainsi les propriétés optiques de telle manière que la fraction  $f$  d'énergie dans la direction avant est ôtée des paramètres de diffusion :

$$\tau' = (1 - \varpi_0(\lambda, \tau) \cdot f) \cdot \tau \quad (2.110)$$

$$\varpi_0'(\lambda, \tau) = \frac{(1 - f) \cdot \varpi_0(\lambda, \tau)}{1 - \varpi_0(\lambda, \tau) \cdot f} \quad (2.111)$$

$$g' = \frac{g - f}{1 - f} \quad (2.112)$$

L'équation de transfert radiatif est réécrite avec ces nouvelles variables. En particulier, l'approche de Delta-Eddington consiste à prendre :

$$f = \frac{w_2}{5} \quad (2.113)$$

Finalement, un système de transfert radiatif ainsi normalisé présente une épaisseur optique plus faible et une diffusion avant réduite, tout en gardant les autres paramètres, comme la réflexion, identiques. La plus forte transmission du flux net qui en résulte doit être corrigée.

Ces méthodes à 2 flux, comme la méthode de Delta-Eddington, fournissent une précision acceptable mais seulement pour un jeu de données restreint. Ces méthodes permettent d'évaluer l'énergie radiative échangée entre différents milieux plans parallèles. Il faut toutefois prendre garde à la façon dont est évaluée la dépendance angulaire du champ de luminance et de la fonction de phase. Les approximations utilisées sont en effet empiriques et les résultats obtenus doivent être compris comme des estimations. Il n'existe pas de méthode a priori pour estimer la précision, mais on a besoin d'utiliser la méthode « exacte » pour obtenir une solution qui pourra être utilisée pour estimer la précision des solutions de l'approche à deux flux.

#### 2.5.4.3 Méthode des ordonnées discrètes

Il s'agit d'une méthode numérique exacte développée par Chandrasekhar dans les années 1950 (Chandrasekhar, 1960). On cherche à numériser l'intégrale de diffusion. La technique consiste alors à appliquer une quadrature de Gauss de telle sorte que pour toute fonction  $f$  :

$$\int_{-1}^1 f(\mu) \cdot d\mu \approx \sum_{j=-n}^n a_j \cdot f(\mu_j) \quad (2.114)$$

où  $a_j$  sont les poids déterminés par une interpolation de Lagrange, et  $\mu_j$  les racines des polynômes d'ordre pair de Legendre. On appelle  $\mu_j$  les ordonnées discrètes.

L'équation de transfert radiatif s'écrit finalement :

$$\begin{aligned} \mu_i \cdot \frac{dL_{\lambda, m}(\tau, \mu_i)}{d\tau} = & L_{\lambda, m}(\tau, \mu_i) - \frac{\varpi_0(\lambda, \tau)}{2} \cdot \sum_{l=0}^N w_l \cdot P_l(\mu_i) \cdot \sum_{j=-n}^n a_j \cdot P_l(\mu_j) \cdot I(\tau, \mu_j) \\ & - \frac{\varpi_0(\lambda, \tau)}{4\pi} \cdot \sum_{l=0}^N w_l \cdot P_l(\mu_i) \cdot P_l(\mu_0) \cdot F_0 \cdot \exp\left(\frac{\tau}{\mu_0}\right) \end{aligned} \quad (2.115)$$

où  $i = -n, \dots, n$  ( $2n$  termes), les  $a_i$  sont les poids gaussiens, et  $\mu_i$  les angles de quadrature (ou points). Cette décomposition permet par conséquent de transformer l'intégration sur les directions de diffusion multiple en une somme finie, avec  $n$  directions vers le haut et  $n$  directions vers le bas. Le milieu étant hétérogène verticalement, il peut être séparé en différentes couches homogènes en température et en propriétés optiques. La résolution du système d'équations passe par l'inversion d'une matrice. Cependant cette méthode reste coûteuse en temps de calcul pour des applications dans des modèles de climat à échelle globale, où l'on préférera utiliser la méthode à deux flux. Notons que pour  $n=1$  et  $N=1$ , on retrouve la méthode à deux flux permettant d'obtenir les luminances montante et descendante avec :

$$\mu_1 = \frac{1}{\sqrt{3}} \quad (2.116)$$

$$a_j = a_{-j} = 1 \quad (2.117)$$

Nous avons choisi d'utiliser dans cette thèse le code de transfert radiatif TUV (Madronich and Flocke, 1998) qui présente une interface avec le code DISORT (Stamnes et al. 1988) pour traiter la méthode des ordonnées discrètes, mais qui propose également des interfaces différentes, comme l'approche de Delta-Eddington. Notre choix a été motivé par le besoin de calculer les flux dans le domaine UV et sur le spectre solaire et de déterminer les luminances de manière cohérente et à un coût de calcul acceptable (Chapitre 6).

### 2.5.5 Forçage radiatif de l'aérosol

Les calculs des flux direct  $F_{dir,z}^\downarrow$ , diffusé montant  $F_{diff,z}^\uparrow$ , et diffusé descendant  $F_{diff,z}^\downarrow$  en conditions claires (sans couverture nuageuse) permettent la détermination des flux radiatifs nets  $F_z$  à l'altitude  $z$  dans le domaine UV-visible :

$$F_z = F_{dir,z}^\downarrow + F_{diff,z}^\downarrow - F_{diff,z}^\uparrow \quad (2.118)$$

Les forçages radiatifs additionnels de l'aérosol à la surface (« Bottom Of Atmosphere » : BOA), au sommet de l'atmosphère (« Top Of Atmosphere » : TOA=12 km) et dans la couche atmosphérique contenant des particules (ATM) sont alors calculés comme suit :

$$\Delta F = F_z - F_{0,z} \quad (2.119)$$

$$\Delta F_{ATM} = \Delta F_{TOA} - \Delta F_{BOA} \quad (2.120)$$

avec  $z=BOA$  ou  $z=TOA$ , et l'indice 0 indique un flux calculé en l'absence d'aérosols.

Les taux d'échauffement liés à la présence seule des aérosols sont calculés par :

$$\frac{\partial T(z)}{\partial t} = \frac{g_0}{C_p \cdot \left(1 + \frac{z}{R_T}\right)^2} \cdot \frac{\partial (F_z - F_{0,z})}{\partial P_r} \quad (2.121)$$

$g_0$  désigne l'accélération nominale due à la gravité sur Terre au niveau de la mer,  $R_T$  est le rayon terrestre moyen,  $C_p$  représente la capacité calorifique spécifique de l'air et  $P_r$  la pression à l'altitude  $z$ .

## Chapitre 3

---

### 3 L'approche multi-instrumentée : Complémentarité des mesures in situ et de télédétection

Afin de caractériser l'aérosol par ses propriétés optiques, structurales et chimiques il est nécessaire d'envisager des stratégies expérimentales qui mettent en œuvre la synergie entre différents types d'instrument. Ces approches multi-instrumentées permettent la détermination simultanée de nombreux paramètres comme la composition chimique, la masse, la granulométrie, l'hygroscopicité, ou les propriétés optiques... Néanmoins, on n'accède pas toujours facilement aux différents paramètres optiques de l'aérosol par la mesure. Il est parfois nécessaire de passer par la connaissance d'autres propriétés pour déterminer un paramètre. On est alors souvent conduit à effectuer une étude de fermeture. Sa réalisation motive l'intérêt que représente la combinaison de mesures in situ, radiométriques passives ou de télédétection active. Tout au long de cette thèse, la représentativité spatio-temporelle des différentes mesures et la complémentarité des jeux de données ont été recherchées en vue de déterminer des paramètres pertinents pour la caractérisation de l'aérosol et son influence sur le bilan radiatif. Cette approche a pu être appliquée aux résultats des campagnes de mesures en région parisienne (ESQUIF et LISAIR), en région sahélienne (AMMA) ou encore en gare souterraine (campagne MAGENTA, en Annexe). L'objectif de cette partie est de présenter les instruments déployés sur le terrain au cours des différentes campagnes de mesure, leurs applications et les incertitudes engendrées sur les paramètres qu'ils ont permis de restituer.

#### 3.1 Instrumentation in situ

---

##### 3.1.1 Propriétés microphysiques des aérosols

###### *3.1.1.1 Composition chimique par prélèvements sur filtres*

La connaissance de la composition chimique des particules résulte de la collection de celles-ci sur des prélèvements par filtration et de l'analyse de ces échantillons au laboratoire. L'air ambiant est ainsi pompé in situ, ce qui permet de dépôt des aérosols sur différentes membranes. Trois types de filtres de diamètre 47mm répartis en deux lignes de prélèvement en parallèle ont été utilisés au cours des différentes campagnes de mesure que nous avons effectuées (Favez, 2008).

La première ligne avec des filtres en fibre de quartz (QMA, Whatman) est dédiée à l'analyse de la fraction carbonée, qui est séparée en deux composantes principales : le carbone suie

(« Elemental Carbon » : EC pour les mesures thermiques ou « Black Carbon » : BC pour les mesures optiques) et le carbone organique (« Organic Carbon » : OC). La fibre de quartz permet d'éviter l'artéfact lié à la fraction inorganique de l'aérosol. Notons que les aérosols ont souvent des signatures optiques et thermiques bien distinctes (Sciare et al., 2003). La quantité de BC, responsable de la partie absorbante, peut être estimée par la détermination de l'atténuation sur le filtre de la lumière blanche. Cette mesure est réalisée à l'aide d'un Aethalomètre (Magee Scientific, modèle AE-8) modifié de façon à pouvoir effectuer des mesures sur des portions de filtres collectés sur le terrain (Lioussé et al., 1993). La deuxième méthode, détaillée par Cachier et al. (1989), consiste à analyser le contenu en carbone par coulométrie (Ströhlhein, modèle 702C). La quantité de carbone total (EC + OC) est analysée directement sur une portion de filtre. Sur la deuxième portion du filtre, la fraction OC est d'abord éliminée par une précombustion à 340° pendant 2h sous flux d'oxygène. La quantité de EC est alors évaluée en mesurant le pH d'une solution piégeant le CO<sub>2</sub> libéré lors du chauffage du carbone particulaire à 1200°C. La quantité de OC est obtenue en ôtant cette mesure de EC à la quantité totale de carbone. La limite de détection est beaucoup plus basse pour la technique optique (10 ngC.m<sup>-3</sup>). Pour la méthode thermique, la limite de détection du coulomètre est de 3 µgC, et l'incertitude totale sur la mesure est estimée à moins de 10%.

La deuxième ligne de prélèvement est dédiée aux mesures gravimétriques de la masse et à l'analyse des ions réalisées sur des filtres en polycarbonate (Nuclepore, Whatman). Ces membranes sont hydrophobes et permettent de réduire l'effet lié à l'adsorption de gaz sur le filtre. Sur la ligne de prélèvement, un porte filtre à double étage (Stack Filter Unit : « SFU ») permet de combiner deux filtres nuclépores de 8 µm et 0.4 µm de porosité. Il devient alors possible de discriminer la fraction fine de la fraction grossière de l'aérosol. La limite entre ces deux fractions se situe aux alentours de 2 µm de diamètre aérodynamique équivalent. Les filtres sont mis à tremper au bain sonore pour en extraire la fraction hydrosoluble. La solution obtenue, traitée pour éviter la prolifération bactérienne qui introduirait un biais sur les concentrations d'anions organiques et d'ammonium, est analysée par chromatographie pour quantifier les espèces solubles majeures de l'aérosol. Les analyses cationique (pour la mesure de Na<sup>+</sup>, NH<sub>4</sub><sup>+</sup>, K<sup>+</sup>, Mg<sup>2+</sup> et Ca<sup>2+</sup>.) et anionique (pour la mesure de Cl<sup>-</sup>, NO<sub>3</sub><sup>-</sup>, SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>) sont effectuées à l'aide d'un chromatographe DIONEX DX600. La sensibilité des analyses ioniques est de l'ordre de 0.1ppb, et les valeurs de blanc sont inférieures à 30 ppb pour chaque ion. L'incertitude de mesure est inférieure à 5%.

#### 3.1.1.2 Mesures de la masse de l'aérosol

L'analyseur TEOM1400 (Tapered Element Oscillating Microbalance ; Fig. 3.1) développé par Rupprecht et Patashnick est fréquemment utilisé au laboratoire pour la mesure de la concentration massique de particules en suspension dans l'air jusqu'à des concentrations de plusieurs centaines de mg/m<sup>3</sup>. Le TEOM est système composé de deux éléments de base, un compartiment sonde contenant la micro balance et un rack électronique. Le principe de mesure est basé sur la pesée des particules échantillonnées à l'aide de la micro balance. L'air aspiré au moyen d'une pompe de prélèvement passe à travers un filtre disposé sur une nacelle en quartz oscillante. La masse déposée sur le filtre engendre une diminution de la fréquence d'oscillation de la microbalance. Cette variation de fréquence est enregistrée en continu et convertie en variation de masse  $\Delta m$  par le calculateur de l'appareil. La fréquence d'oscillation  $f$  (Hz) obéit en effet à l'expression :

$$f = \sqrt{\frac{k_0}{m}} \quad (3.1)$$

Où  $k_0$  est une constante. En passant de la fréquence initiale  $f_0$  à la fréquence  $f$ , on a alors :

$$\Delta m = k_0 \left( \frac{1}{f^2} - \frac{1}{f_0^2} \right) \quad (3.2)$$

La variation de masse de matière déposée est mesurée par le changement de fréquence. Le volume de l'air étant connu, la concentration est obtenue en divisant la masse mesurée par le volume d'échantillon prélevé.

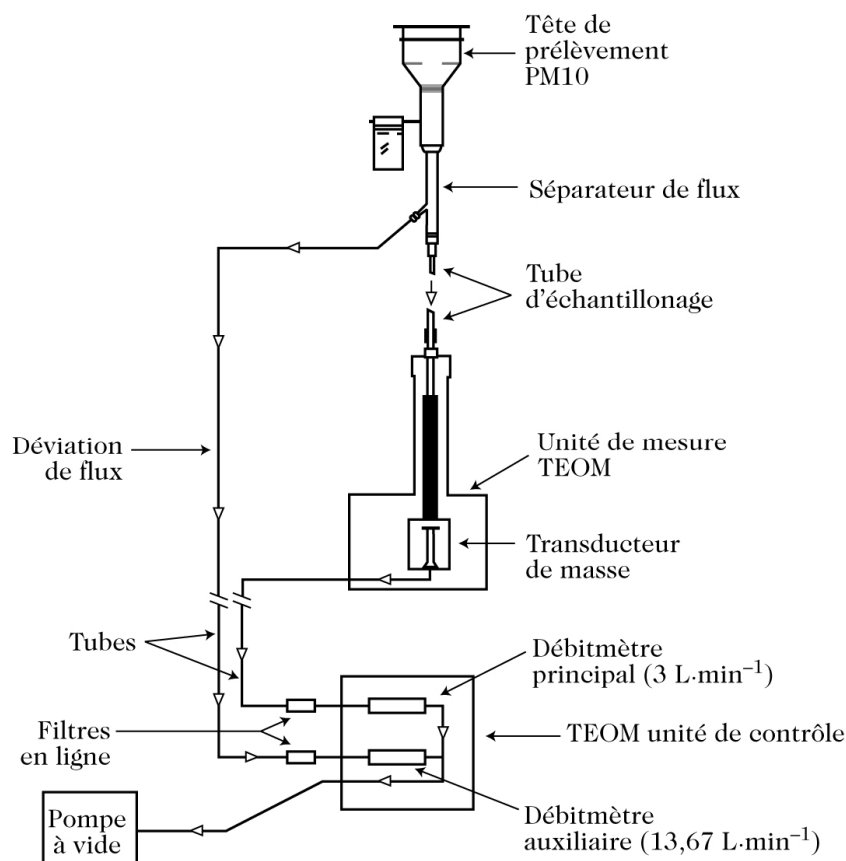


Fig. 3.1 : Principe de fonctionnement d'un TEOM

Afin de minimiser les effets des variations brutales d'humidité relative, provoquant la condensation ou l'évaporation de vapeur d'eau sur la surface du filtre de la microbalance, le constructeur recommande de chauffer le conduit qui achemine les particules sur le filtre à 50°C. Cette stratégie peut ne pas être sans effet secondaire car, à cette température, certaines espèces particulières très volatiles, comme certains composés organiques et des nitrates d'ammonium, peuvent s'évaporer. Cette évaporation est d'autant plus importante que les températures extérieures sont faibles. Ainsi, même si cet analyseur est capable de fournir une valeur par minute, il paraît plus prudent de n'utiliser que des concentrations moyennées. Une des solutions est d'utiliser un système d'équilibration (SES) qui permet de réduire le chauffage en entrée de ligne de 50°C à 30°C tout en maintenant une humidité relative inférieure à 25%. La précision absolue d'un TEOM est de 5 µg.m<sup>-3</sup>.

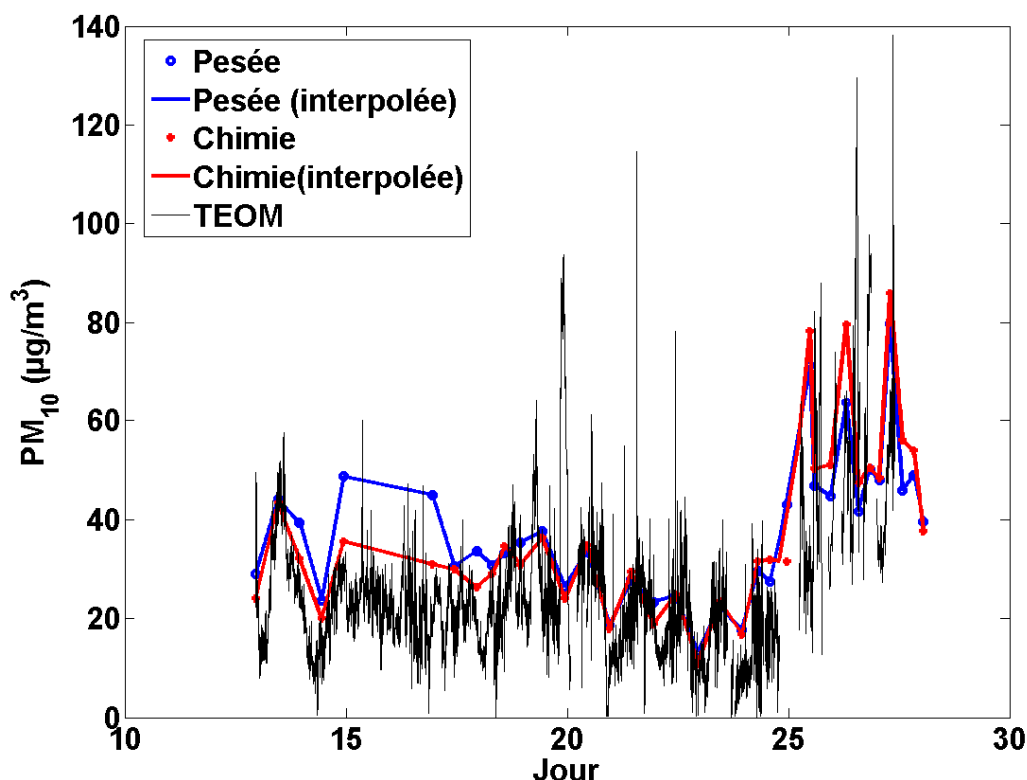


Fig. 3.2 : Comparaison des mesures massiques obtenues sur Paris à partir des observations TEOM et de prélèvements par filtration. La masse obtenue par cumul des éléments chimiques est généralement inférieure à la masse totale en raisons de la présence d'éléments indéterminés, sauf lorsque la fermeture massique possède un biais.

Une comparaison est généralement effectuée entre les mesures de l'analyseur TEOM équipé d'une tête PM10 et les mesures gravimétriques sur filtres (Fig. 3.2). Les valeurs recueillies par le TEOM sont moyennées sur la période d'échantillonnage des filtres qui peut aller de 6 à 24 h environ sur les campagnes que nous avons réalisées. Sur la Fig. 3.3, le coefficient de corrélation n'est pas très élevé ( $\sim 0.65$ ) car sur ces périodes de prélèvement assez longues, les concentrations massiques peuvent fortement varier (transitions jour nuit par exemple), de même que l'humidité relative. Les concentrations plus faibles mesurées par le TEOM sont imputables à la possible volatilisation de certaines espèces dans le conduit d'échantillonnage chauffé à 50°C. Le diamètre de coupure à 10  $\mu\text{m}$  pour le TEOM élimine également les particules les plus grosses (pente inférieure à 1). Nous verrons dans la suite que cela correspond à un rayon réel de particule de l'ordre de 3.8  $\mu\text{m}$  seulement. L'ordonnée à l'origine est toutefois positive, ce qui peut indiquer un artéfact sur l'analyseur TEOM. Il pourrait en effet s'agir de l'adsorption de gaz sur le filtre du TEOM. Les mesures du TEOM sont certainement moins fiables que les méthodes thermiques sur filtres mais la possibilité de délivrer des concentrations avec une bonne précision sur des périodes relativement courtes ( $\sim 10$  min) a contribué à faire de cet instrument une référence normative utilisée par les agences de qualité de l'air.



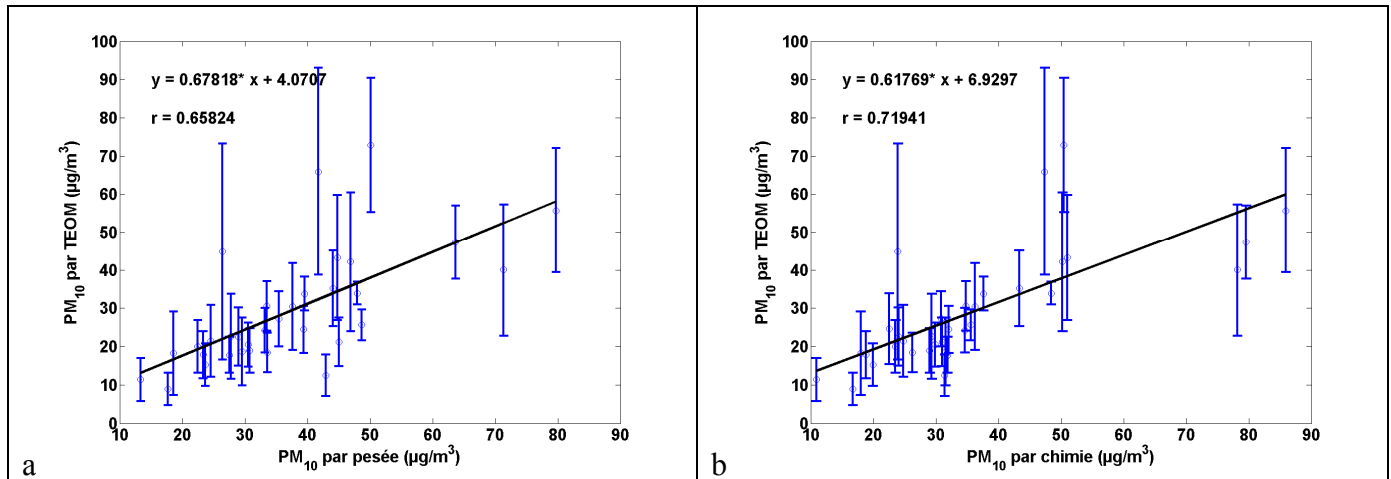


Fig. 3.3 : Corrélations obtenues sur Paris entre les mesures de TEOM et les prélèvements sur filtre par pesée (a) et analyses chimiques (techniques de coulométrie-chromatographie) (b).

#### 3.1.1.3 Restitution de granulométrie

##### a) Les instruments utilisés

De nombreux instruments permettent d'accéder à la distribution granulométrique des aérosols. Dans cette thèse, deux granulomètres (ELPI et PCASP) et un compteur de particules (CPC) ont été utilisés.

L'ELPI pour (Electrical Low Pressure Impactor) est un spectromètre de taille développé à l'université de technologie de Tampere (Dekati, Ltd., (<http://www.dekati.com/elpi.shtml>)) pour contrôler en temps réel, au niveau de la surface, la distribution en taille de l'aérosol dans une large gamme de taille (Keskinen et al., 1992). Douze classes de taille sont utilisées pour des diamètres aérodynamiques allant de 28 nm à 10.03 µm (Fig. 3.4).

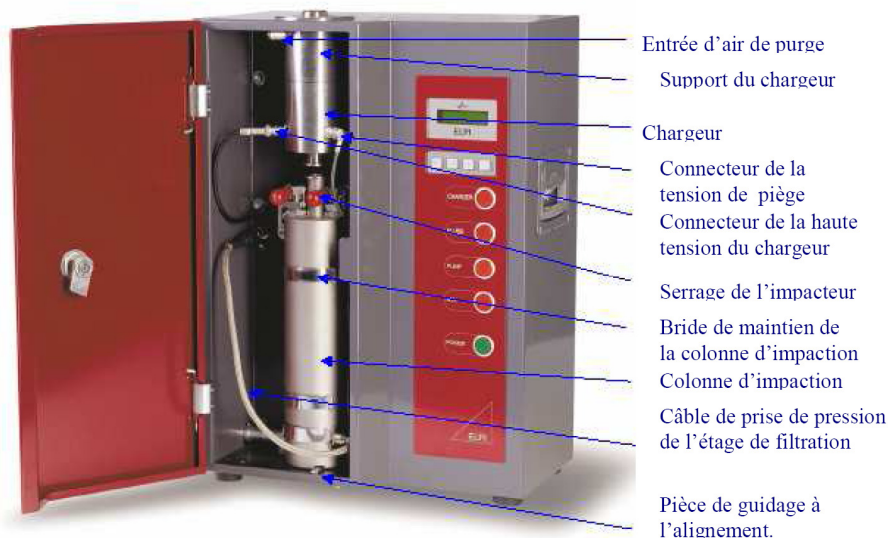


Fig. 3.4 : Photographie d'un ELPI et de ses principaux éléments constitutifs

Les particules sont d'abord chargées électriquement (positivement) en entrée de l'instrument grâce à une pointe corona à 5 kV. La vitesse du fluide est ensuite accélérée, ce qui permet de diriger le jet d'air à haute vitesse contre une surface solide. Les particules supérieures à un certain diamètre de coupure sont alors impactées (Fig. 3.5). Les particules plus petites sont

entraînées vers les impacteurs suivants à basse pression montés en cascade avec un diamètre de coupure décroissant. Un électromètre multicanaux enregistre les charges induites sur chacun des étages (chargés négativement) lors de l'impaction. Les densités surfaciques de courant mesurées fournissant une distribution en taille surfacique, convertie en distribution en nombre. La précision sur la mesure de la concentration en nombre est estimée à 5 % par le constructeur. Pour son fonctionnement une pompe à vide dont le débit doit être entre 7 et 14 m<sup>3</sup>/h à une pression de 100 mbar et un manomètre de 0 à 200 mbar sont nécessaires.

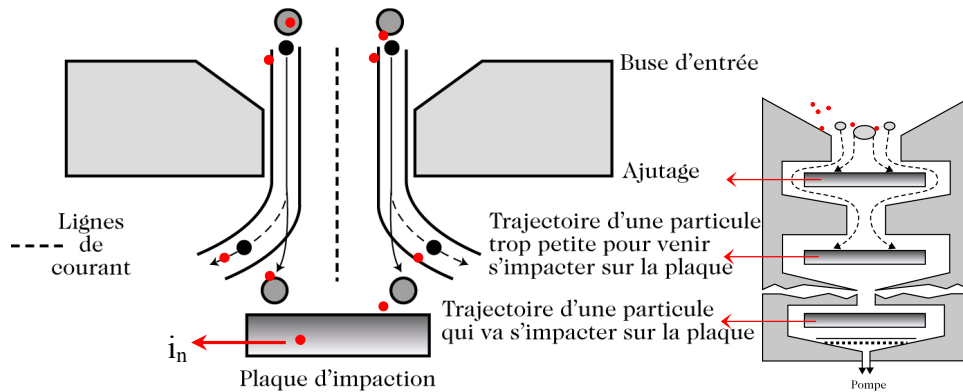


Fig. 3.5 : Schéma de principe d'un granulomètre fonctionnant sur le principe de l'impaction en cascade à basse pression. Source : Delmas et al. (2005)

Le Passive Cavity Aerosol Spectrometer Probe (PCASP) modèle 100 est une sonde in situ développée par Particle Measuring systems (PMS Inc., Boulder, Co) est aussi destiné à mesurer la distribution en taille des aérosols. Ce capteur, dont la tête de prélèvement est représentée sur la Fig. 3.6 est monté au-dessous des ailes ou du fuselage d'un avion.

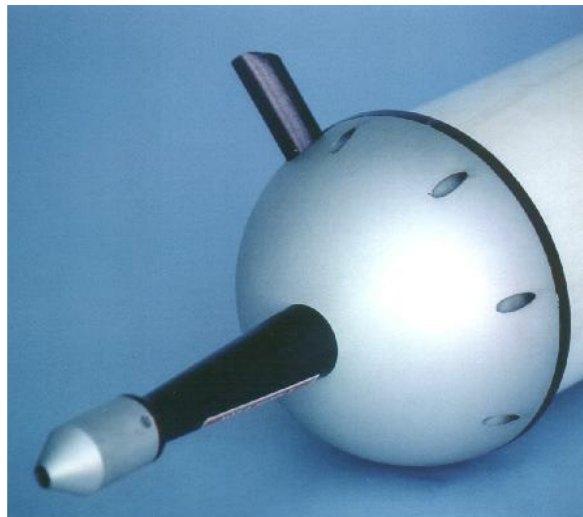


Fig. 3.6 : Photographie de la tête du PCASP

Le PCASP est un compteur optique de particules qui permet, en général, d'accéder à quinze classes de particules. L'air est d'abord introduit de manière aérodynamique lors du mouvement de l'avion. On effectue alors une mesure intégrée entre 35° et 135° de la diffusion, provoquée par une particule unique irradiée par un faisceau laser d'hélium/néon focalisé au centre du volume d'échantillonnage (Fig. 3.7). La particule rencontrée par le faisceau diffuse la lumière dans toutes les directions dont une partie sera renvoyée à un miroir. Un photodétecteur va ensuite convertir la lumière ainsi recueillie en un signal

électrique. La diffusion dépend principalement de la taille de la particule. Le diamètre de la particule est alors déduit de la mesure du signal au moyen d'une courbe d'étalonnage. Celle-ci est déterminée par la théorie de Lorentz-Mie en faisant l'hypothèse d'une particule sphérique ayant les propriétés d'une bille de latex (indice réel égal à 1.58 et indice imaginaire nul) (Strapp et al., 1992). Il a été développé pour la mesure de distributions dimensionnelles d'aérosols de taille comprise entre 0.1 et 3  $\mu\text{m}$ .

Cette approche met en lumière la difficulté d'obtenir des valeurs précises et exactes du nombre de particules. Les prélèvements effectués dans des conditions non isocinétiques peuvent introduire des artefacts sur la mesure. La précision est également sujette au mode de détection par la dispersion d'un faisceau incident et à l'utilisation de billes sphériques en latex de diamètre prédéterminé pour la calibration. Or, les particules atmosphériques possèdent généralement une morphologie assez différente d'une sphère parfaite et possèdent souvent un indice de réfraction de partie imaginaire non nulle. Des corrections sont donc souvent nécessaires (Chapitre 6). La précision sur la concentration en nombre des particules est de l'ordre de 5% pour les particules submicroniques (Dye and Baumgartner, 1984). La distribution en taille restituée à partir de cet instrument ne représente pas nécessairement les conditions ambiantes. En comparant les mesures granulométriques du PCASP à celles obtenues par une sonde spectrométrique à diffusion avant, Strapp et al. (1992) ont conclu que les aérosols apparaissaient séchés avant la mesure pour des humidités relatives allant jusqu'à 80-90 %.

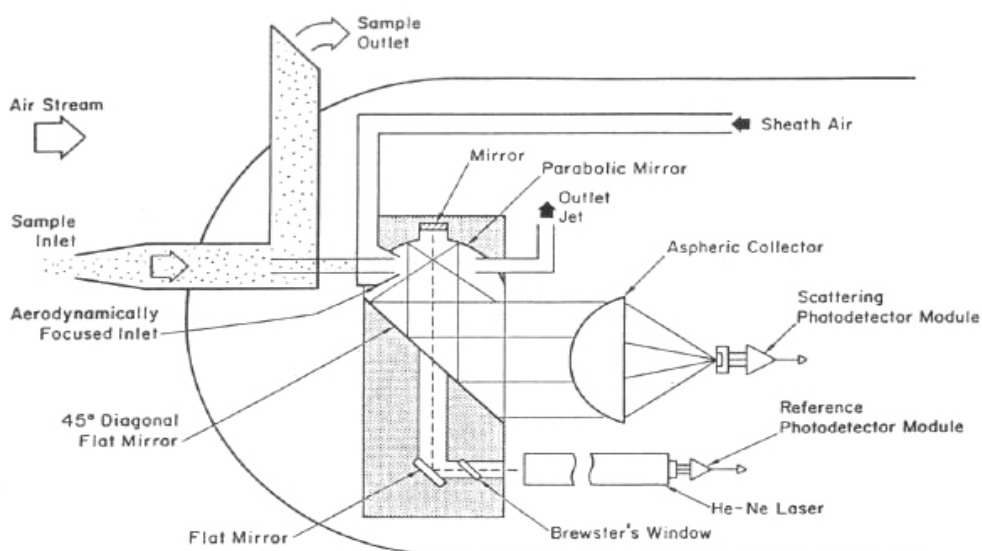


Fig. 3.7 : Schéma du fonctionnement du PCASP.

La même technique est utilisée par les compteurs de particules optiques. Nous avons également utilisé un compteur de particules de type Condensation Particles Counter (CPC modèle 3022A, fabriqué par TSI). Le CPC donne la concentration totale des particules ayant un diamètre compris entre 0.007 et 3  $\mu\text{m}$ . Les particules sont aspirées dans le CPC et grossies (jusqu'à quelques mm de diamètre) par condensation de la vapeur de butanol en sursaturation présente dans l'appareil. Les gouttelettes passent à travers un faisceau laser qu'elles diffusent. La lumière diffusée est alors collectée par des photodétecteurs et convertie en signal électrique que l'on relie à la concentration de particules. Les concentrations sont obtenues avec une incertitude relative de l'ordre de 5% (Chazette and Liousse, 2001). Couplé aux

mesures du granulomètre ELPI, il peut ainsi donner accès aux particules très fines de diamètres entre 7 et 28 nm.

#### b) Procédure d'analyse

Les données de l'ELPI ou du PCASP fournissent donc des éléments sur la granulométrie de l'aérosol, qui se rapprochent fortement d'une fonction de répartition. Le résultat est pourtant limité à des classes de taille bien précises. Or c'est la distribution en taille de l'aérosol qui est recherchée, c'est-à-dire une fonction qui nous donne la proportion de particules de rayon  $r$  (Eq. 2.1 et 2.2). Pour un aérosol à  $p$  modes, les  $p$  rayons modaux, les  $p$  écart types et  $p-1$  taux d'occupation (en vertu de l'Eq. 2.3) sont inconnus, ce qui fait au total  $3p-1$  inconnues à déterminer. A partir des 12 classes de taille de l'ELPI (13 avec la complémentarité du CPC) ou des 15 classes de taille du PCASP, il est possible de traiter des distributions à 4 ou 5 modes. En pratique, notre étude s'est restreinte à la détermination de 3 modes. Les données supplémentaires permettent de mieux contraindre la restitution des paramètres inconnus.

Dans la classe de taille  $c$  délimitée par les rayons  $r_{min}^c$  et  $r_{max}^c$ , le nombre de particules estimé à partir des paramètres inconnus peut s'écrire :

$$N_{est}^c = \int_{r_{min}^c}^{r_{max}^c} \frac{dN}{dr} \cdot dr = \sum_{i=1}^{p=3} \frac{x_i \cdot N_{tot}}{2} \cdot \left[ erf \left( \frac{\sqrt{2}}{2} \cdot \frac{\ln \left( \frac{r_{max}^c}{r_{mi}} \right)}{\ln(\sigma_i)} \right) - erf \left( \frac{\sqrt{2}}{2} \cdot \frac{\ln \left( \frac{r_{min}^c}{r_{mi}} \right)}{\ln(\sigma_i)} \right) \right] \quad (3.3)$$

La méthode employée est un algorithme itératif qui prend en arguments des valeurs des paramètres inconnus initialement fixés de manière arbitraire et qui cherche à minimiser l'expression suivante :

$$\sum_c (N_{est}^c - N_{réel}^c)^2 \quad (3.4)$$

où  $N_{réel}^c$  représente le nombre de particules mesurée dans la classe  $c$ . Les paramètres de la loi lognormale sont alors déterminés itérativement par la procédure d'ajustement des moindres carrés. La Fig. 3.8 présente les résultats de cette inversion pour des mesures réalisées à Paris en mai 2005 au cours de la campagne LISAIR.

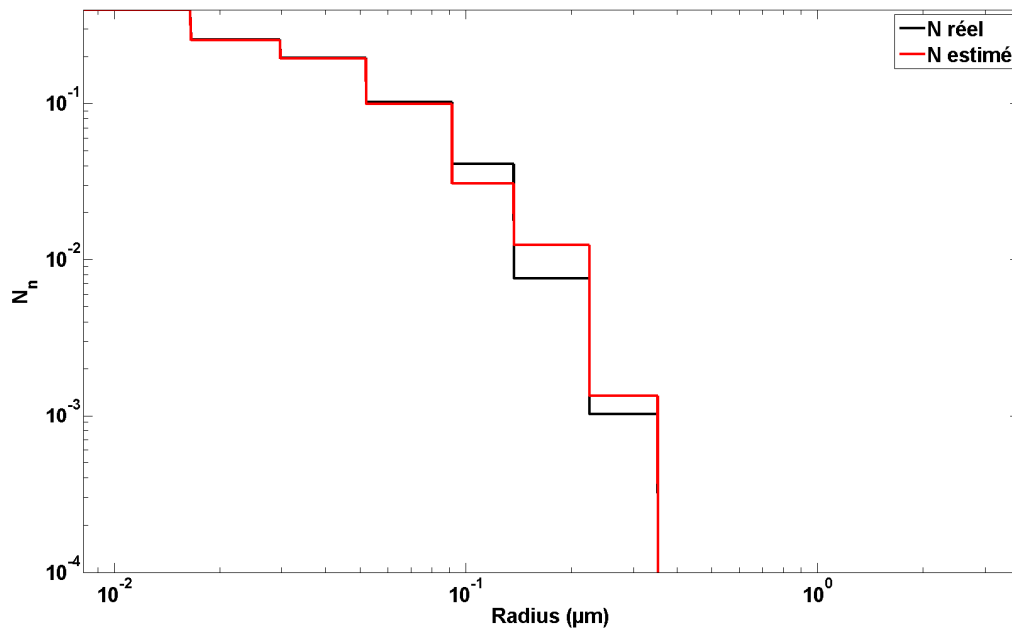
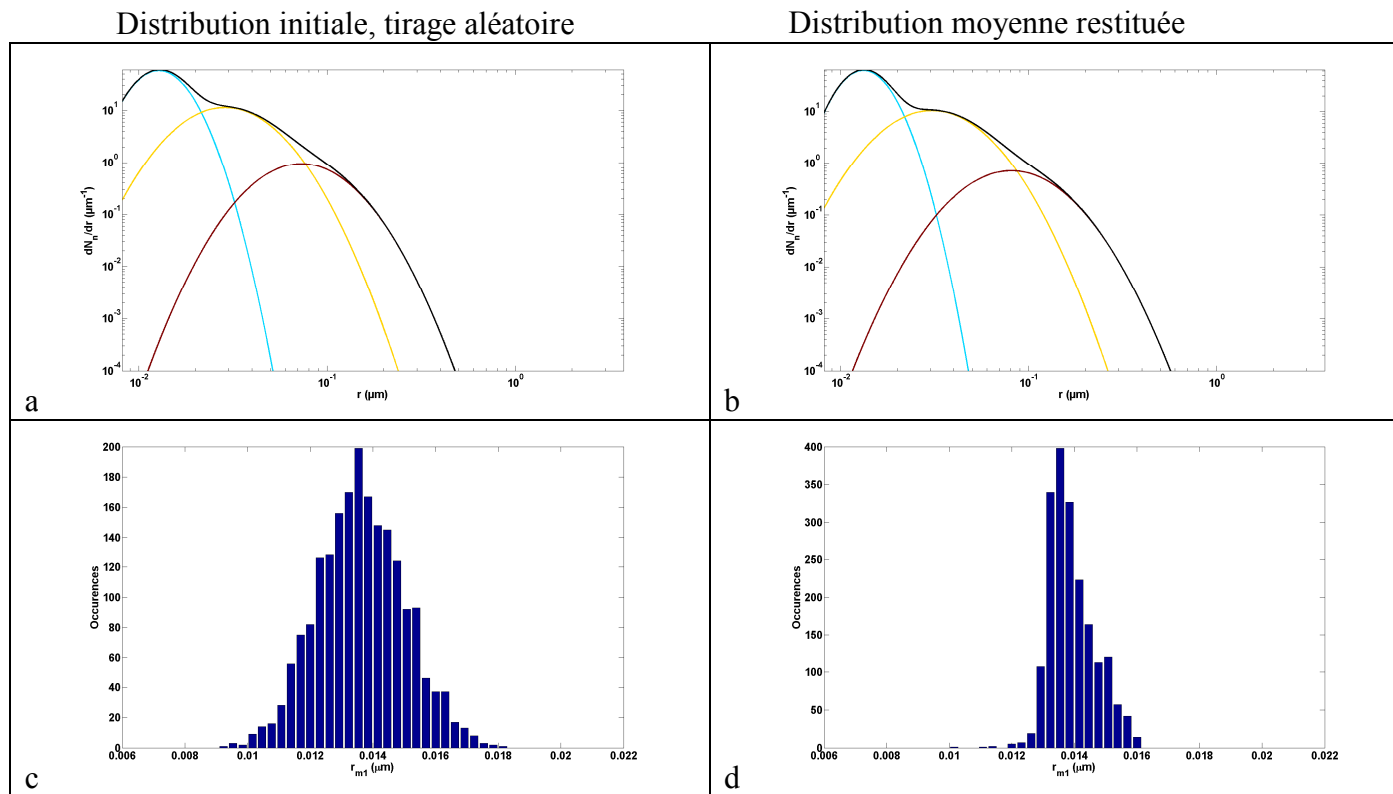
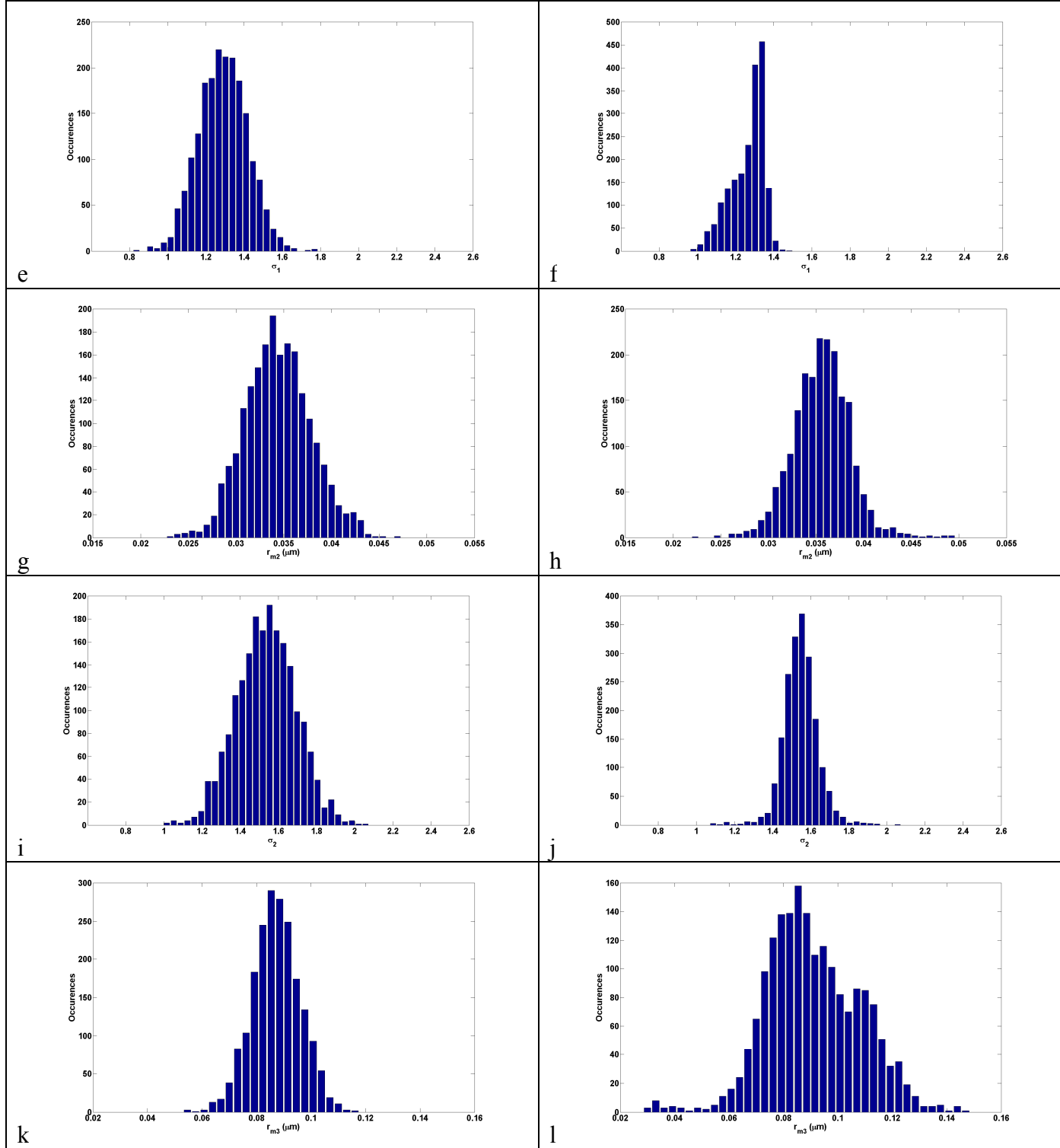


Fig. 3.8 : Fonction de répartition de la distribution en taille normalisée mesurée et simulée sur Paris le 10 mai 2005.

L'apparition d'un mode grossier n'avait pas été observée. Les nombres de particules (normalisés) restitués sont très proches de ceux mesurés : un écart inférieur à 2% est constaté pour les 4 premières classes qui contribuent majoritairement à la distribution en nombre. Cette dernière comportant trois modes est donnée en Fig. 3.9a.



### 3. L'approche multi-instrumentée



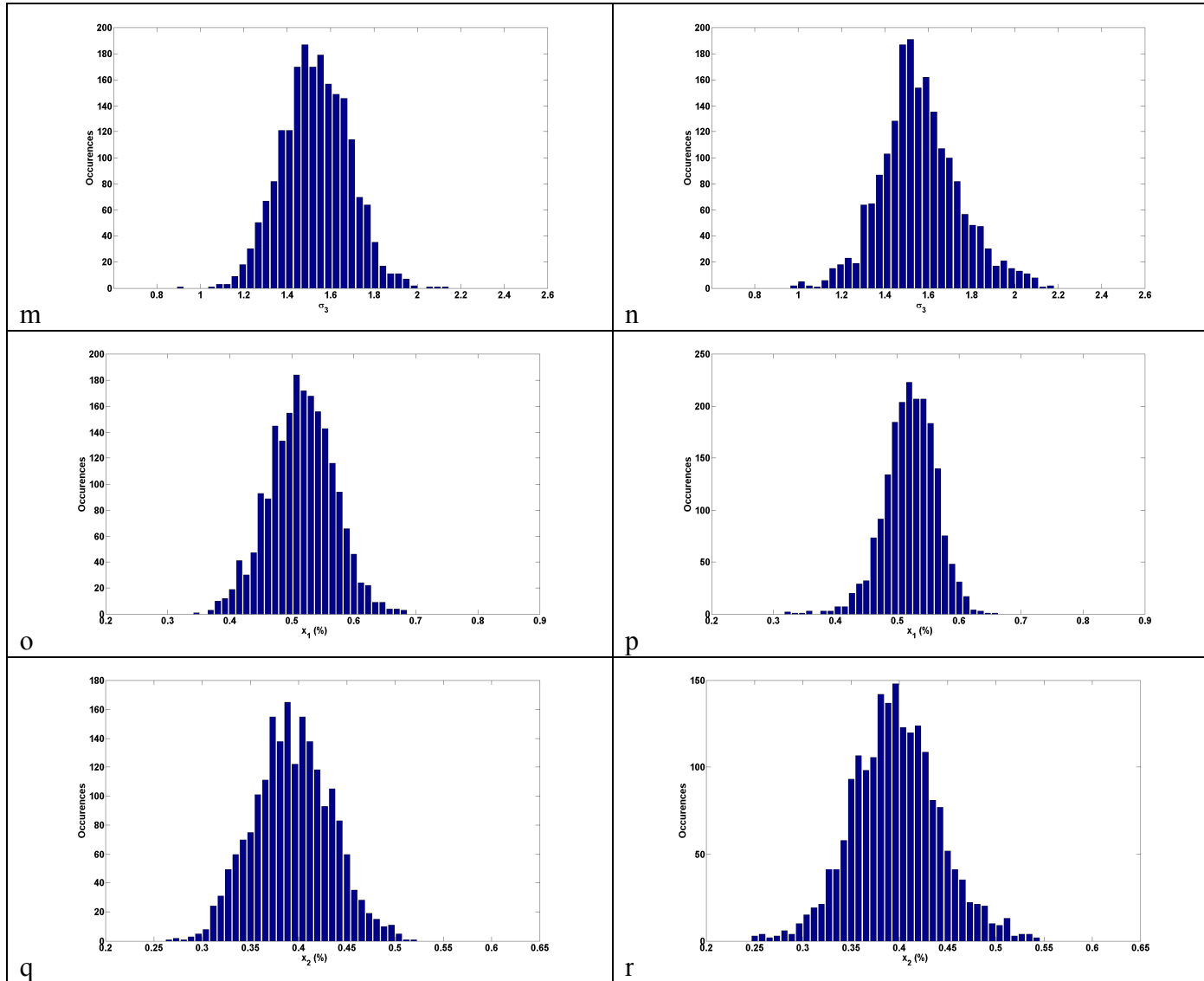


Fig. 3.9 : Distributions normalisées en taille sur Paris le 10 mai 2005 (a et b) et histogrammes des rayons modaux (c,d,g,h,k,l), écarts-types (e,f,i,j,m,n) et taux d'occupation correspondants (o,p,q,r). Les graphiques dans la colonne de gauche représentent les paramètres d'entrée de la méthode de Monte-Carlo (les tirages aléatoires sur chaque variable), ceux de droite les paramètres de sortie (les distributions des résultats sur chaque variable).

#### c) Etude de sensibilité

Les valeurs mesurées sont entachées d'incertitudes dues à la mesure elle-même ou au principe de fonctionnement du granulomètre. L'influence de ces incertitudes sera traitée dans les chapitres suivants. Cependant, l'approche elle-même peut introduire des erreurs. C'est à partir de ces conditions initiales que l'algorithme d'inversion de granulométrie tente de converger vers la solution du problème de minimisation, et on constate expérimentalement que des valeurs initiales arbitraires ne permettent d'obtenir la convergence la plupart du temps, éventuellement parce que le nombre d'itérations n'est pas suffisant. Il est donc très important de choisir avec soin les valeurs de départ même si, en pratique, on dispose d'une certaine marge de manœuvre sur les valeurs choisies. Il faut ainsi vérifier que la solution obtenue par convergence de l'algorithme n'est pas un minimum local. La stabilité de la méthode est évaluée par une approche de Monte-Carlo, comme dans Chazette et al. (2001). Si la solution trouvée est stable, une perturbation des conditions initiales ne devrait pas gêner l'inversion de

granulométrie et la convergence vers cette même solution. Une série de 2000 tirages aléatoires distribués uniformément dans un intervalle encadrant la solution a été utilisée. L'intervalle correspond à un écart-type relatif de 10% sur chacun des 8 arguments de la distribution en taille. Les résultats sont présentés sur la Fig. 3.9. Les distributions des résultats sur chaque variable présentent des écarts-types relatifs inférieurs à ceux utilisés pour les tirages aléatoires sur ces mêmes variables. Les résultats indiquent donc une très bonne stabilité des solutions trouvées. La seule erreur significative concerne le rayon modal du troisième mode (Fig. 3.9k et Fig. 3.9l), mais ce mode ne représente qu'environ 7% de la distribution en taille. Aucun biais n'est par ailleurs observé. La distribution en taille normalisée après bruitage donnée en Fig. 3.9b est très proche de la solution trouvée par convergence de l'algorithme. Il ne s'agit donc pas d'un minimum local. Cette méthode a été utilisée pour inverser les granulométries mesurées sur Paris (campagnes ESQUIF et LSAIR) ainsi que celles déterminées au Niger (campagne AMMA).

#### 3.1.2 Propriétés optiques des aérosols

##### 3.1.2.1 Mesures de diffusion

On n'accède pas de façon aisée à la mesure de la fonction de phase car l'observation doit être réalisée sur l'ensemble des angles de diffusion (de  $0^\circ$  à  $180^\circ$ ). On recherche alors plutôt une valeur intégrée de cette fonction de phase en utilisant un néphélomètre intégrant. Le néphélomètre à 3 longueurs d'onde (450, 550 et 700 nm) fabriqué par TSI (modèle 3563) fournit le coefficient de diffusion de l'aérosol pour des angles de diffusion entre  $7^\circ$  et  $170^\circ$  (diffusion néphélométrique totale) et entre  $90^\circ$  et  $170^\circ$  (diffusion néphélométrique arrière). L'air est prélevé avec une période d'échantillonnage rapide (jusque 1 s). Il est généralement équipé d'une tête de prélèvement  $PM_{10}$  pour des mesures au sol. Il est aussi tout à fait adapté pour des mesures effectuées à partir d'une plateforme aéroportée.

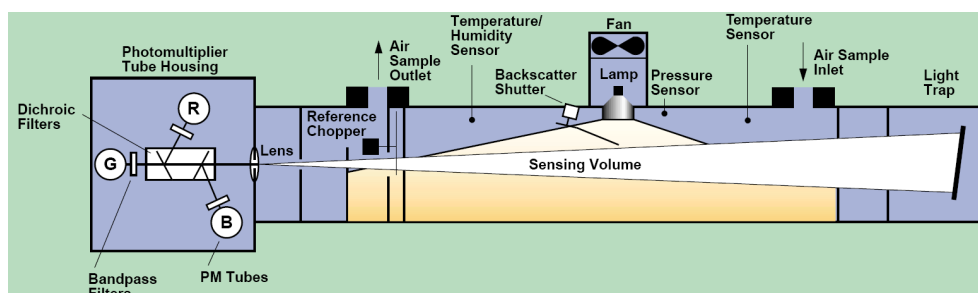


Fig. 3.10 : Principe de fonctionnement du néphélomètre TSI-3563.

L'échantillon d'air chargé en aérosols est injecté à l'intérieur de la chambre de mesure et éclairé par une lampe halogène sous un angle compris entre  $7^\circ$  et  $170^\circ$  (Fig. 3.10). La lumière diffusée par les particules est alors détectée par trois photomultiplicateurs (pour chacune des trois longueurs d'onde : 450, 550 et 700 nm). En mode diffusion arrière, un obturateur bascule devant la source lumineuse, bloquant la lumière dans une gamme d'angle entre  $7^\circ$  et  $90^\circ$ . Seule la lumière diffusée en arrière ( $90^\circ$  à  $170^\circ$ ) parvient aux photodétecteurs. Pour tenir compte des angles de diffusion non observés, un facteur correctif doit être appliqué (Anderson and Ogren, 1998). La sous-estimation des mesures due à la troncature de la fonction de phase peut être corrigée à partir de la distribution en taille moyenne et de l'indice de réfraction complexe moyen de l'aérosol. Pour chacune des trois longueurs d'onde, le coefficient de diffusion mesuré par le néphélomètre peut s'écrire :



$$\sigma_{scat}^{neph} = \int_0^{2\pi} \int_7^{170} \frac{d\sigma}{d\Omega} \cdot \sin(\theta) \cdot d\theta \cdot d\varphi \quad (3.5)$$

D'après la relation 2.43,

$$\sigma_{scat}^{neph} = \int_0^{2\pi} \int_7^{170} \sigma_{scat} \cdot \frac{P_{11}(\theta)}{4\pi} \cdot \sin(\theta) \cdot d\theta \cdot d\varphi \quad (3.6)$$

c'est-à-dire :

$$\sigma_{scat}^{neph} = \frac{\sigma_{scat}}{2} \cdot \int_7^{170} P_{11}(\theta) \cdot \sin(\theta) \cdot d\theta \quad (3.7)$$

Le coefficient de diffusion après correction s'écrit donc en fonction de la mesure du néphélomètre :

$$\sigma_{scat} = \frac{\sigma_{scat}^{neph}}{\frac{1}{2} \cdot \int_7^{170} P_{11}(\theta) \cdot \sin(\theta) \cdot d\theta} \quad (3.8)$$

Cela conduit à un facteur correctif de l'ordre de 3-4% en région parisienne (Fig. 3.11a et Chapitres 3 et 4) et qui peut atteindre 30-40% pour les poussières désertiques en fonction de la longueur d'onde (Fig. 3.11c et Chapitre 6).

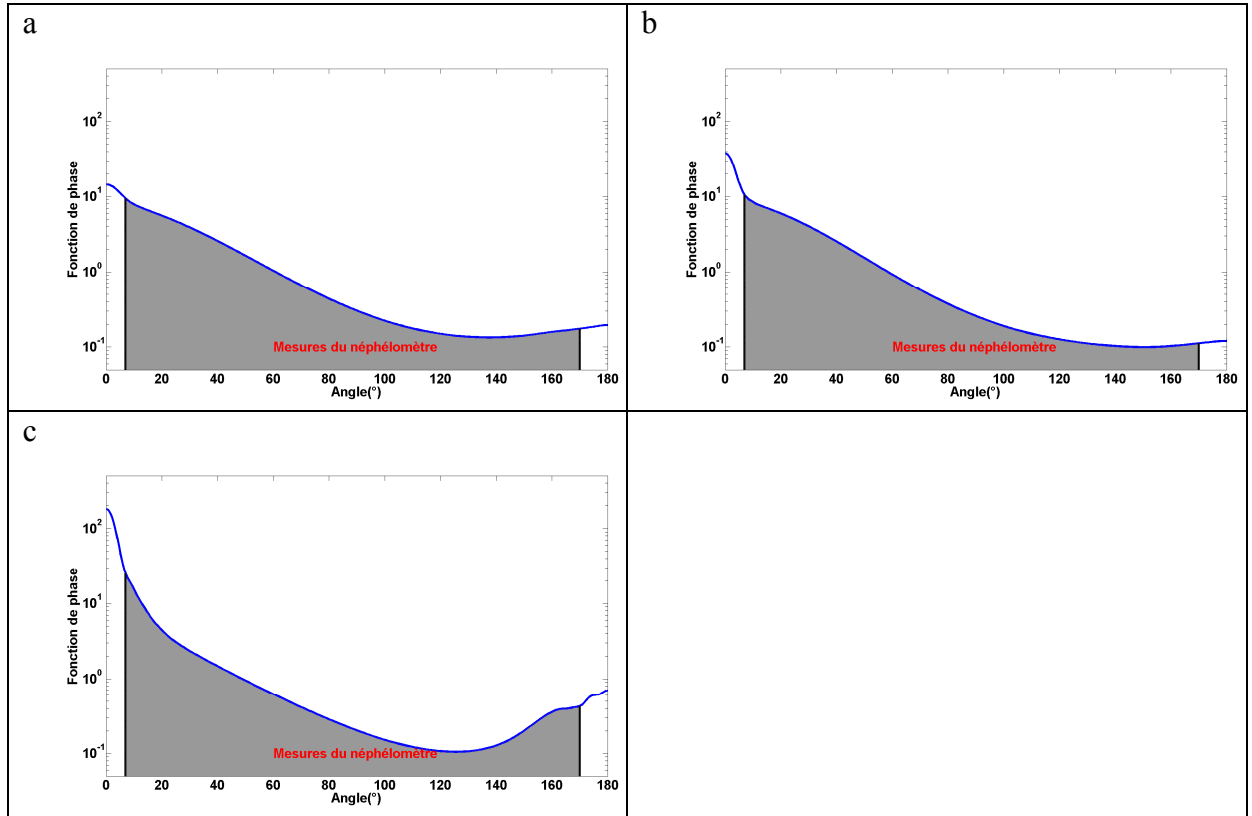


Fig. 3.11 : Fonctions de phase d'aérosols parisiens (a), issus de feux de biomasse (b) et désertiques (c) et fractions effectivement mesurées par le néphélomètre (en gris). Les calculs ont été effectués avec des distributions en taille typiques extraites des inversions d'Almucantar du photomètre solaire (Sect. 3.2.3) et des valeurs d'indices de réfraction de 1.51-0.017i à 532 nm pour les aérosols parisiens (Raut and Chazette, 2008a), 1.53-0.047i à 355 nm pour les particules de feux de biomasse et 1.52-0.008i à 355 nm pour les aérosols désertiques (Raut and Chazette, 2008b).

La chambre de mesure de la diffusion est maintenue aux alentours de 35 à 40 % d'humidité relative (conditions sèches). L'incertitude relative sur la mesure est inférieure à 10% et est principalement causée par la variabilité de l'humidité relative à l'intérieur de l'instrument (Bodhaine et al., 1991). En conditions sèches, l'incertitude relative après calibration, évaluée à partir de la reproductibilité de mesures en laboratoire, est de quelques pourcents seulement (<5%). L'incertitude sur la dépendance spectrale en diffusion est estimée inférieure à 10%.

D'autre part, le PdRam (Personal DataRam) est un petit instrument néphélométrique portable (Fig. 3.12) qui peut être embarqué à bord d'un ballon-sonde (Dulac et al., 2001) ou d'un porteur léger de type ULM (Ultra-Léger Motorisé) (Chazette et al., 2007a). Il mesure la diffusion de côté de l'aérosol sur un domaine angulaire de 45° à 95° à la longueur d'onde de 880 nm. La largeur de bande est de 40 nm. Dans cette thèse, l'instrument est calibré en termes de coefficient d'extinction de l'aérosol à 870 nm par comparaison à des mesures photométriques (Chazette et al., 2007a). L'incertitude relative sur la mesure du coefficient de diffusion de l'aérosol est de l'ordre de 5%.

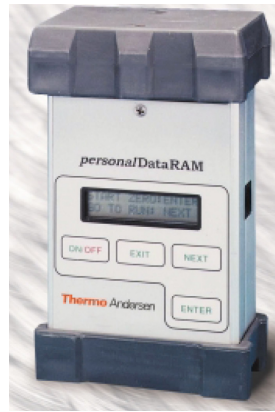


Fig. 3.12 : Photographie du PdRam.

#### 3.1.2.2 Mesures d'absorption

Depuis les années 80, les concentrations de BC peuvent être obtenues de manière presque continue par l'aethalomètre développé par Magee Scientific (Hansen et al., 1984) sensible à la partie absorbante de l'aérosol (Hansen and Novakov, 1990). L'air est filtré sur un filtre blanc en fibre de quartz où se déposent les particules. L'instrument mesure l'atténuation optique du faisceau de lumière transmise à travers un échantillon d'aérosols qui sont venus se déposer sur le filtre. La sensibilité du filtre est améliorée grâce au tissu fibreux qui permet de générer de multiples réflexions du faisceau incident. L'atténuation mesurée est ensuite reliée à la quantité de BC collectée sur le filtre, et donc à sa concentration atmosphérique, car le carbone suie est considéré, par le constructeur, comme la seule composante de l'aérosol qui absorbe significativement la lumière dans le domaine UV-visible-proche IR. La concentration massique en BC est déterminée par la relation suivante :

$$M_{BC} = \frac{\alpha_{abs}}{\sigma_{abs}^{spec}} \quad (3.9)$$

où  $\sigma_{abs}^{spec}$  représente la section efficace spécifique d'absorption de l'aérosol, et  $\alpha_{abs}$  le coefficient d'absorption qui s'exprime sous la forme :

$$\alpha_{abs} = \frac{\Delta\tau_{att} \cdot A}{F \cdot \Delta t} \quad (3.10)$$

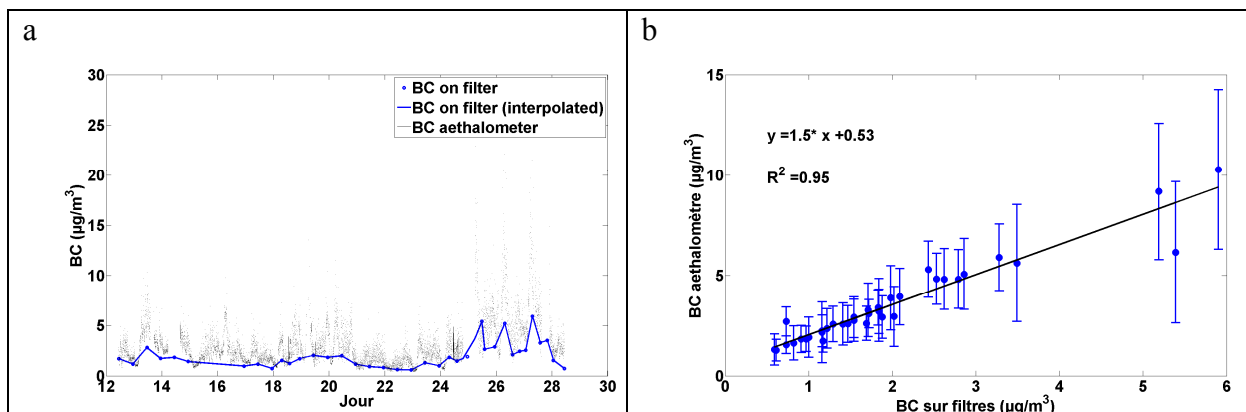
$\Delta\tau_{att}$  est la différence d'atténuation optique due au dépôt d'aérosol sur le filtre pendant la période de collection  $\Delta t$  ( $\sim 2$  min) avec un flux d'air à travers le filtre de  $F$  ( $\sim 5$  L/min) ;  $A$  est la surface du spot sur le filtre collectant l'aérosol ( $A \sim 0.5$  cm<sup>2</sup>). L'appareil change automatiquement de spot avant saturation, grâce à un réglage de la pompe adapté. Une mesure de l'atténuation due au filtre seul est effectuée avant de poursuivre les prélèvements.

L'incertitude de la mesure est liée aux fluctuations d'intensité de la lampe qui peuvent produire une accumulation de 5 ng.cm<sup>-2</sup> sur le filtre. Il faut également corriger le coefficient d'absorption de l'influence de la diffusion multiple causée par les aérosols collectés sur le filtre (Bond et al., 1999). L'instrument peut ainsi interpréter 2% de la diffusion comme de l'absorption, conduisant à une surestimation de l'absorption de l'ordre de 20 %.

L'aethalomètre que nous avons utilisé fonctionne à 7 longueurs d'onde de l'UV (370 nm) à l'IR (950 nm). La section efficace spécifique d'absorption est souvent supposée varier avec l'inverse de la longueur d'onde (Reid and Hobbs, 1998). Le constructeur de l'instrument donne la loi :

$$\sigma_{abs}^{spec} (m^2 \cdot g^{-1}) = \frac{14625}{\lambda(nm)} \quad (3.11)$$

Notons que la valeur obtenue à 880 nm (16.6 m<sup>2</sup>.g<sup>-1</sup>) est utilisée comme référence pour les aethalomètres ne disposant que d'une seule longueur d'onde. Cependant, la réponse de l'aethalomètre peut varier suivant le type d'aérosol. La présence de poussières terrigènes par exemple peut introduire un artéfact analytique, étant donné que celles-ci absorbent le rayonnement dans le domaine UV et visible, notamment s'ils contiennent des oxydes de fer (Raut et al., 2008a). La surestimation de la quantité en carbone suie peut atteindre 20% pour des sites influencés par ce type de particules (Hansen et al., 1993; Pinnick et al., 1993). Il est donc important de corriger la réponse optique de l'instrument en fonction de la composition chimique des aérosols. La mesure de l'aethalomètre peut être comparée à celle de prélèvements chimiques. Les valeurs de l'aethalomètre sont ainsi moyennées sur la période de prélèvement des filtres. La Fig. 3.13 présente deux exemples de ce type d'intercomparaisons entre l'aethalomètre et les prélèvements sur filtre.



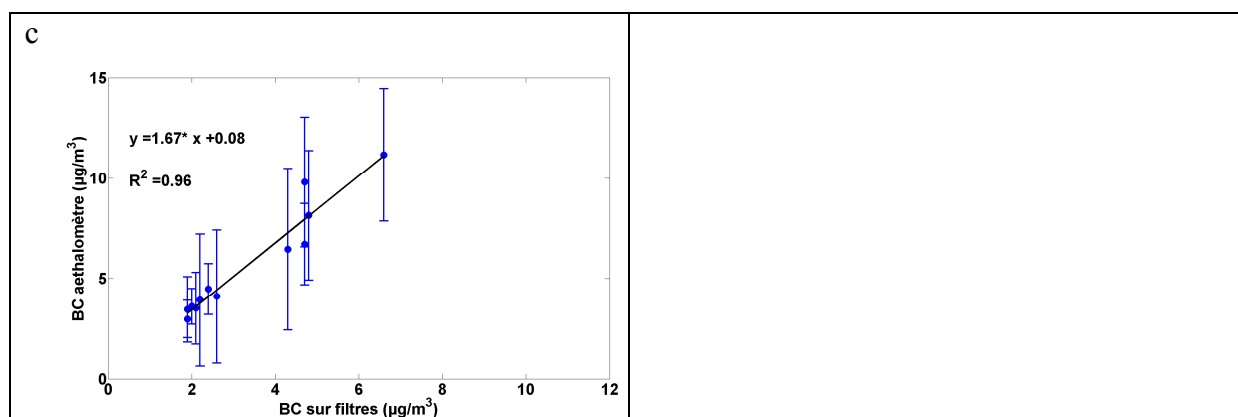


Fig. 3.13 : Evolution temporelle (a) et corrélation (b et c) des mesures de BC obtenues par l'aethalomètre et les prélèvements sur filtre dans les rues de Paris (a et b) et dans une gare de RER à Paris (c).

Les coefficients de corrélations sont très élevés (0.95-0.96), ce qui indique une variabilité similaire des concentrations obtenues par les deux méthodes. Pourtant, la valeur de la pente est toujours supérieure à 1, ce qui indique une surestimation de l'absorption avec les observations de l'aethalomètre. En prenant les filtres pour référence et en négligeant les erreurs sur le coefficient d'extinction, cela indique que la section efficace spécifique était sous-estimée par la calibration du constructeur. Cela suggère que la réponse de l'aethalomètre peut varier d'un facteur 3 à 5 suivant le type d'aérosols (Liousse et al., 1993). Nous avons toutefois préféré travailler avec les valeurs directement mesurées par l'instrument, c'est-à-dire les valeurs d'atténuation optique, et donc les coefficients d'absorption. La conversion en masse de BC introduit en effet des incertitudes assez importantes, surtout dans le domaine UV sur lequel nous travaillons pour la synergie avec les signaux lidar (355 nm).

Il est également possible de mesurer le coefficient d'absorption de l'aérosol par un PSAP (Particle Soot Absorption Photometer) commercialisé par Radiance Research (Bond et al., 1999). Sur le même principe que l'aethalomètre, le PSAP mesure le coefficient d'extinction à partir de la perte de transmission de la lumière à travers un filtre, traduisant l'absorbance du filtre. Cet analyseur est plus sensible et délivre des données en quasi temps réel (toutes les 10 secondes) ce qui en fait un instrument de choix pour les mesures aéroportées. Deux types de PSAP ont été utilisés lors de SOP-0 de la campagne AMMA : le premier fonctionnant à 567 nm à bord de l'avion du MetOffice, et le second à trois longueurs d'onde (467, 530 et 660 nm) implanté sur le site ARM (Atmospheric Radiation Measurements) de Niamey (Miller et al., 2007). Comme l'aethalomètre, le coefficient d'absorption du PSAP doit être corrigé des erreurs dans la surface du filtre exposée, le flux d'air, et l'influence de la diffusion par les particules déposées sur le filtre suivant les méthodes de Bond et al. (1999).

Outre les observations in situ (échantillonnage local effectué soit au niveau du sol, soit en altitude par moyen aéroporté) visant à l'obtention des paramètres chimiques, microphysiques et optiques, la télédétection permet la mesure à distance des propriétés optiques des aérosols en différents endroits de la colonne atmosphérique (sondage actif où l'on impose la source de rayonnement) et de manière intégrée sur la colonne atmosphérique (sondage passif où la source de rayonnement est solaire). Ces deux types de télédétection sont présentés dans les parties qui suivent.

## 3.2 Télédétection passive – Radiométrie

Dans cette étude, nous utiliserons 3 sources d'observation passives différentes : les mesures photométriques et actinométriques ( $J(NO_2)$ ) depuis le sol et les mesures satellitaires.

### 3.2.1 Taux de photodissociation de la molécule de dioxyde d'azote

Des instruments permettent de déterminer des fréquences de photolyse par des mesures du rayonnement : ils sont directement étalonnés en fréquence de photolyse. Ils doivent recueillir le rayonnement dans un angle solide  $4\pi$ . L'actinomètre optique  $JNO_2$  (commercialisé par Metcon, Glashütten en Allemagne) est un appareil spécifiquement dédié à la mesure de la constante de photodissociation de la molécule de  $NO_2$ , qui représente la probabilité pour une molécule de  $NO_2$  d'être photodissociée en absorbant le rayonnement solaire.  $J(NO_2)$  est une fonction du flux actinique  $\Psi$ , du rendement quantique de dissociation  $\chi_{NO_2}$  et de la section efficace d'absorption  $\sigma_{NO_2}$  de la molécule  $NO_2$  à la température de la parcelle d'air  $T$ :

$$J(NO_2) = \int_{\lambda} \Psi(\lambda) \cdot \sigma_{abs, NO_2}(\lambda, T) \cdot \chi_{NO_2}(\lambda) \quad (3.12)$$

L'intégration est réalisée entre 300 et 420 nm (Fig. 3.14).

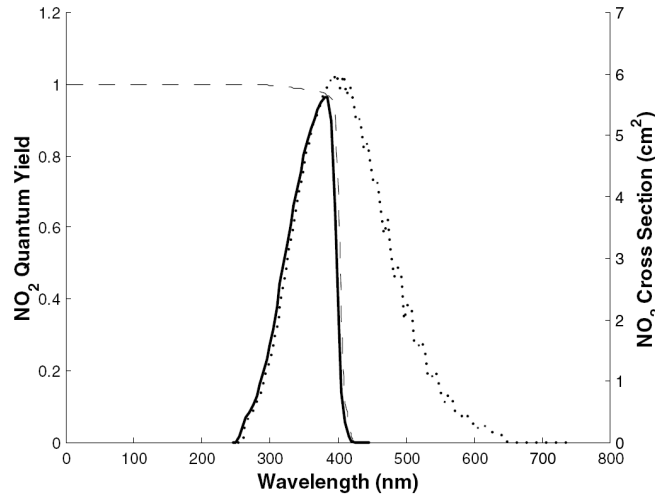


Fig. 3.14 : Section efficace d'absorption (pointillés) et rendement quantique (tirets) de  $NO_2$  en fonction de la longueur d'onde. Le produit de ces deux quantités (trait plein), qui exprime la dépendance spectrale de  $J(NO_2)$ , est significatif entre 300 et 420 nm. Source : Randriamiarisoa et al. (2004a).

Le flux actinique est mesuré par un radiomètre constitué de 2 coupoles ayant une réponse isotrope sur  $2\pi$  sr et montés en opposition l'un par rapport à l'autre suivant la verticale (Fig. 3.15). Cette disposition permet la séparation des contributions individuelles à partir des composantes du flux actinique venant du haut et du bas (Randriamiarisoa et al., 2004a).

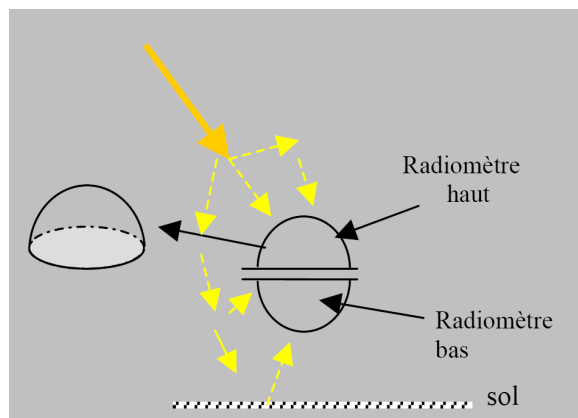


Fig. 3.15: Principe de fonctionnement de l'actinomètre JNO<sub>2</sub>

L'appareil utilisé est calibré directement en terme de taux de photolyse de la molécule de NO<sub>2</sub> par rapport à un actinomètre chimique. Les valeurs de  $J(NO_2)$  (en s<sup>-1</sup>) sont obtenues toutes les minutes avec une précision relative de l'ordre de 2%.

#### 3.2.2 Restitution de l'albédo de surface par spectroradiométrie

L'albédo est un paramètre fondamental pour la modélisation du climat car c'est une propriété qui contrôle la majeure partie du flux d'énergie dans la couche limite de surface. Les observations satellitaires utilisées dans ce travail donnant l'albédo de surface sont celles réalisées avec le capteur MODIS (<http://modis.gsfc.nasa.gov/>). L'instrument MODIS (MODerate-resolution Imaging Spectroradiometer) est un radiomètre embarqué sur les satellites héliosynchrones américains TERRA et AQUA (Salomonson et al., 1989). Lancée en décembre 1999, la plateforme TERRA survole l'équateur du nord au sud le matin (10h30 locales au dessus de l'équateur, noeud descendant) alors que la plateforme AQUA, lancée en avril 2002, survole au sein de l'AQUA-TRAIN l'équateur du sud au nord dans l'après midi (13h30 locales au dessus de l'équateur, noeud ascendant). Avec une trace de 2330 km de large au sol (en direction transversale à la trajectoire du satellite), chacune de ces 2 plateformes à une altitude orbitale de 705 km permet d'observer la totalité de la surface terrestre en un ou deux jours (environ 14 orbites par jour, c'est à dire 2 passages par jour à nos hautes latitudes pour chaque satellite) et de se procurer des données sur 36 bandes spectrales, allant du visible (0.410 µm) à l'infrarouge thermique (15 µm) (King et al., 1992). MODIS possède donc une haute résolution spectrale, une couverture globale presque journalière et une haute résolution spatiale (500 m à 470 nm et 2.13 µm, 250 m à 0.66 µm et 0.86 µm et 1 km à 3.8 µm). Un grand nombre de variables géophysiques de l'Atmosphère et de l'Océan, ainsi que des informations de radiométriques et de géolocalisation, sont restituées à partir de ces observations.

Le produit BRDF (Bidirectional Reflectance Distribution Function)/Albedo MOD43 (version 4) de MODIS en particulier permet de restituer l'albédo de surface dans 7 bandes spectrales à 0.05° de résolution spatiale en latitude et longitude sur un cycle de 16 jours. De sa caractérisation de l'anisotropie de surface, l'algorithme réalise des intégrations angulaires permettant d'obtenir des albédos de surface dans chacune des 7 bandes spectrales et des 3 bandes larges couvrant le spectre solaire. Les mesures d'albédo, indépendantes de la situation atmosphérique, sont une réflectance directionnelle hémisphérique (albédo de ciel noir : BSA pour « black-sky albedo ») obtenue en absence de composante diffuse et fonction de l'angle zénithal solaire et une réflectance bi-hémisphérique (albédo de ciel blanc : WSA pour

« white-sky albedo ») obtenue en absence de composante directe lorsque la composante diffuse est isotrope. Le BSA est calculé en intégrant la BRDF sur toutes les directions d'observation, c'est-à-dire sur l'hémisphère haut de diffusion, appelé hémisphère d'exitance, pour une seule direction d'éclairement solaire. Le WSA est calculé en intégrant la BRDF sur toutes les directions d'incidence et d'observation. Pour estimer la réflectance de surface dans chaque bande spectrale, une correction de l'effet des gaz, des aérosols et des cirrus fins est apportée. Un algorithme de détection nuageuse a été développée pour MODIS (Ackerman et al., 1998). Les paramètres restitués par MODIS concernant les aérosols ont été validés à l'aide de mesures photométriques (Remer et al., 2002).

La dépendance angulaire à l'angle zénithal solaire de l'albédo peut être paramétrisée par un simple polynôme. Les albédos de surface intrinsèques (BSA et WSA) peuvent finalement être utilisés pour restituer l'albédo réel (ou albédo de ciel bleu) en tenant compte de la distribution prédominante de la lumière diffusée, suivant la relation :

$$alb_{surf}(\theta, \lambda, \tau) = WSA(\lambda) \cdot f(\theta, \lambda, \tau) + BSA(\theta, \lambda) \cdot (1 - f(\theta, \lambda, \tau)) \quad (3.13)$$

où  $f(\theta, \lambda, \tau)$  désigne la fraction de lumière diffusée variable avec l'angle zénithal solaire  $\theta$ , l'épaisseur optique  $\tau$  des aérosols et la longueur d'onde  $\lambda$  considérée. Cette estimation est réalisée à partir d'une table comprenant les valeurs de  $f$  fournies par MODIS et établies à l'aide du code de transfert radiatif 6S (Second Simulation of the Satellite Signal in the Solar Spectrum, Vermote et al., 1997). Un exemple de restitution de l'albédo de surface est donné en Fig. 3.16. Les valeurs données entre les latitudes 13.47°N et 13.49°N et les longitudes 2.16°E et 2.18°E seront utilisées pour les calculs de transfert radiatif au Chapitre 6.

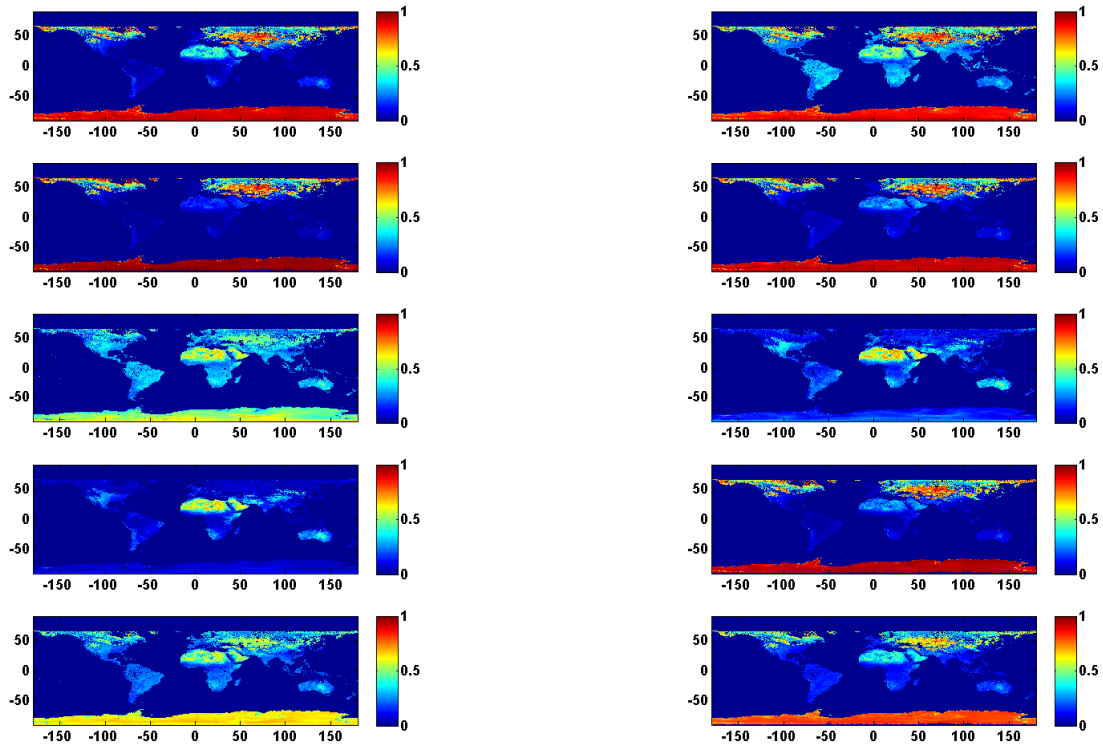


Fig. 3.16 : Distribution globale d'albédos de surface obtenus par MODIS entre le 17 janvier et le 1<sup>er</sup> février 2006 pour un angle zénithal correspondant à midi à Niamey (Niger) et pour différentes bandes spectrales : de haut en bas et de gauche à droite : 0.620-0.670  $\mu\text{m}$ , 0.841-



0.876  $\mu\text{m}$ , 0.459-0.479  $\mu\text{m}$ , 0.545-0.565  $\mu\text{m}$ , 1.230-1.250  $\mu\text{m}$ , 1.628-1.652  $\mu\text{m}$ , 2.105-2.155  $\mu\text{m}$ , 0.400-0.700  $\mu\text{m}$ , 0.700-3.000  $\mu\text{m}$ , 0.400-3.000  $\mu\text{m}$ .

#### 3.2.3 Epaisseur optique des aérosols

Des mesures du rayonnement solaire direct peuvent être effectuées dans les principales fenêtres atmosphériques afin d'obtenir des évaluations fiables de l'atténuation provoquée par les particules d'aérosol. Cela concerne principalement la basse troposphère qui concentre la majeure partie des particules d'aérosol (sauf dans le cas des éruptions volcaniques majeures injectant une grande quantité de particules dans la stratosphère), et où l'intensité des processus de diffusion et d'absorption est maximale. La seule technique permettant la mesure directe de l'épaisseur optique aérosol est précisément la mesure de l'atténuation par l'atmosphère du rayonnement solaire direct qui constitue le principe de l'approche photométrique. Les mesures photométriques sont faites dans l'ultraviolet, le visible et le proche infrarouge en utilisant des radiomètres à faible ouverture de champ optique et à canaux spectraux étroits. Dans ce domaine spectral on peut considérer la fonction source d'émission atmosphérique négligeable. La mesure faite depuis le sol contient alors le terme prédominant du rayonnement solaire direct, auquel il faut ajouter un terme de rayonnement diffus (diffusions primaire et multiple). Pour une observation dans un angle solide très faible, la luminance diffuse apparaît très faible par rapport à la luminance directe en atmosphère claire. Cela revient en pratique à négliger la fonction source dans l'Eq. 2.76. On retrouve alors l'Eq. 2.58 de Beer-Bouguer-Lambert qui aboutit à la définition de l'épaisseur optique avec la relation 2.60.

L'instrument consacré à cette approche est appelé pyréliomètre, c'est-à-dire un photomètre visant directement le Soleil (Fig. 3.17). Il permet la restitution des propriétés optiques et microphysiques principales (intégrées sur la colonne atmosphérique) qui caractérisent le rôle de l'aérosol atmosphérique dans le bilan radiatif. Le photomètre automatique à visée solaire utilisé (fabriqué par CIMEL Electronique, Paris) permet d'effectuer des mesures directes de l'atténuation dans un faible angle solide ( $1.2^\circ$  de champ de vue). Les mesures en visée directe vers le soleil sont réalisées dans 4 bandes spectrales (440, 670, 870, 1020 nm) de largeur 10 nm, mais d'autres sont parfois disponibles (340, 380, 500, 940 nm). Ces bandes spectrales correspondent à des fenêtres atmosphériques où l'absorption due aux composés gazeux est faible.



Fig. 3.17 : Photographie d'un photomètre solaire CIMEL réalisant un visée directe du soleil



Afin d'assurer la surveillance des particules sur la planète, un réseau de photomètres de ce type est installé sur l'ensemble du globe: le réseau mondial AERONET (AErosol RObotic NETwork) mis en place par NASA's Earth Observing System permet un archivage des données des propriétés optiques des aérosols en temps quasi-réel (Holben et al., 1998). Il est opérationnel depuis le milieu des années 90 et contient plus de 400 instruments. Les instruments sont installés dans diverses régions géographiques correspondant à de multiples écosystèmes : zones arides, forêts boréale et tropicale, régions tempérées, zones océaniques et côtières, montagnes.

Techniquement, le photomètre solaire est équipé d'un robot deux axes permettant des mouvements dans les plans zénithaux et azimutaux. Il peut donc viser tout point de la voûte céleste avec une précision de  $0.05^\circ$  et possède deux détecteurs, un pour les visées solaires et un pour les mesures de luminance de ciel.

- La visée directe (Fig. 3.18a) fournit de façon robuste l'épaisseur optique des aérosols à haute cadence d'échantillonnage de 1 à 5 min (Holben et al., 1998). L'atténuation due à la diffusion des molécules Rayleigh, à l'absorption par l'ozone (obtenue par interpolation à partir d'une climatologie d'ozone) est estimée et ôtée pour isoler l'épaisseur optique de l'aérosol. La variabilité temporelle des nuages est typiquement plus importante que celle des aérosols, ce qui permet d'éliminer les observations contaminées par les nuages.
- Le deuxième type de visée, nécessitant une exploration complète du ciel ( $\sim 15$  min), consiste à réaliser des mesures d'almucantars (cercles parallèles à l'horizon (Fig. 3.18b)) et dans le plan principal utiles au calcul de la fonction de phase, de l'albédo de diffusion simple, de l'indice de réfraction, du facteur d'asymétrie et de la distribution en taille des aérosols. Il s'agit des résultats d'inversion de différents algorithmes (Nakajima et al., 1983, 1996 ; Dubovik et al., 2000 ; Dubovik and King, 2000). Des valeurs de contenu atmosphérique en vapeur d'eau dans la colonne verticale issues des mesures photométriques sont aussi disponibles (Plana-Fattori et al., 1998).

Nous n'utilisons dans cette thèse que les résultats issus de l'algorithme d'inversion de Dubovik and King (2000). Ce dernier consiste à restituer la fonction de phase des aérosols en contraignant les observations multiangulaires et multispectrales du rayonnement direct et diffus avec un code de transfert radiatif, en supposant les particules sphériques ou de forme sphéroïdale (Dubovik et al., 2000) et un sol de type Lambertien.

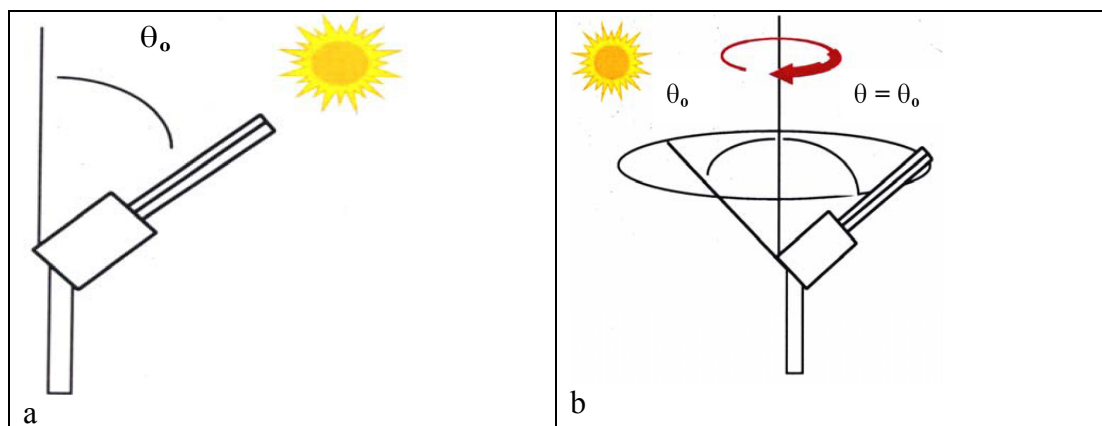
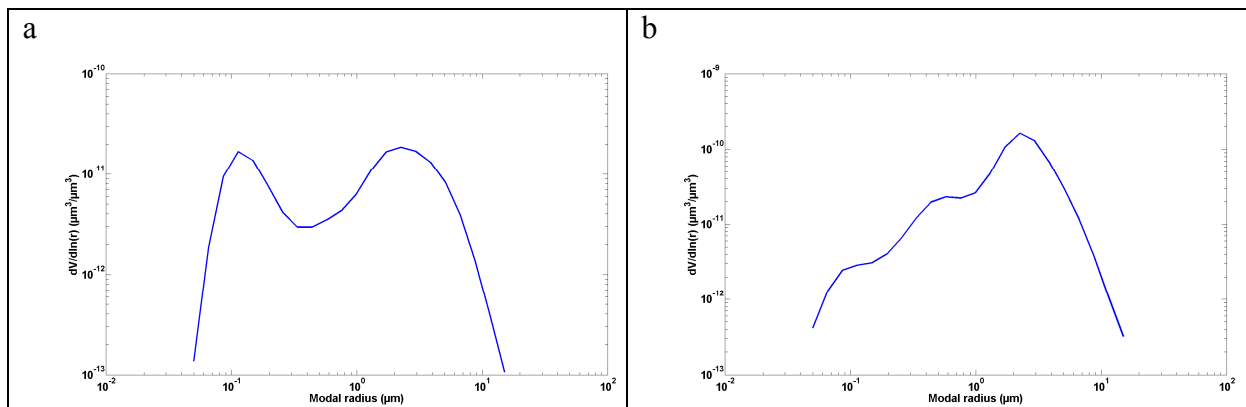


Fig. 3.18: Protocoles de mesures du photomètre CIMEL E318 : visée directe avec l'angle zénithal solaire  $\theta_0$  (a) et almucantar à  $\theta_0$  (b).

Les données ont été exploitées au niveau 2 (le masque nuage est appliqué ainsi que l'étalonnage final et les données sont inspectées manuellement). L'incertitude totale sur les données provient de la précision de l'instrument (qui est négligeable) et de l'étalonnage. L'incertitude totale sur l'épaisseur optique de l'aérosol mesurée en ciel clair (à partir d'un instrument récemment étalonné) est estimée typiquement inférieure à  $\pm 0.01$  pour des longueurs d'onde supérieures à 440 nm et inférieure à  $\pm 0.02$  pour des longueurs d'ondes plus courtes (Holben et al., 1998). Dubovik et al. (2000) donne une incertitude absolue maximale de 0.02 pour l'épaisseur optique. L'indice complexe de réfraction peut être obtenu pour des épaisseurs optiques supérieures ou égales à 0.5 à 440 nm pour un angle zénithal solaire supérieur à  $60^\circ$  et sa restitution est associée à une erreur absolue de 0.04 pour la partie réelle et d'environ 30% pour la partie imaginaire dans le cas d'un aérosol fortement absorbant ou 50% pour un aérosol faiblement absorbant. Cela conduit à une incertitude absolue sur  $\omega_0$  de l'ordre de 0.03. Les épaisseurs optiques des particules dans Paris sont cependant généralement bien inférieures à 0.4 à 440 nm : la précision sur l'ACRI n'est donc pas garantie. L'incertitude sur le coefficient d'Angström est de l'ordre de 0.03 pour une épaisseur optiques des aérosols de 0.2 (Hamonou et al., 1999). Ces calculs d'incertitude supposent une erreur absolue sur  $\tau$  de 0.01, une erreur relative sur la luminance du ciel de 5%, une erreur absolue sur l'angle azimutal de  $0.5^\circ$  et une erreur relative sur la réflectance de surface estimée a priori de 50 % (Dubovik et al., 2000).

La distribution volumique en taille intégrée sur la colonne peut aussi être restituée par l'inversion almucantar. Elle représente la fonction de densité logarithmique du volume total de particules avec une résolution de 22 classes en rayon entre 0.05 et 15  $\mu\text{m}$  et s'exprime en  $\mu\text{m}^3$  de particules par  $\mu\text{m}^2$  de surface d'air. Il est donc nécessaire de normaliser cette distribution fournie avec une échelle de hauteur adaptée à la couche dans laquelle les aérosols sont supposés distribués de façon homogène. Pour pouvoir être utile aux calculs de propriétés optiques ou de bilan radiatif réalisés dans cette thèse, cette distribution fournie par AERONET doit être décomposée en modes lognormaux. Une première estimation des rayons modaux et écarts-types géométriques est réalisée à partir du calcul numérique (approximation polynômiale) de la dérivée seconde de la distribution (Cuesta, 2006). Elle fournit les arguments inconnus de la distribution en volume qui permettent d'initialiser la procédure d'inversion présentée à la Sect. 3.1.1.3. On réalise ainsi, de manière itérative, un ajustement plus précis de la fonction théorique à la courbe expérimentale. Deux exemples de résultats de cette approche sont présentés dans la Fig. 3.19.



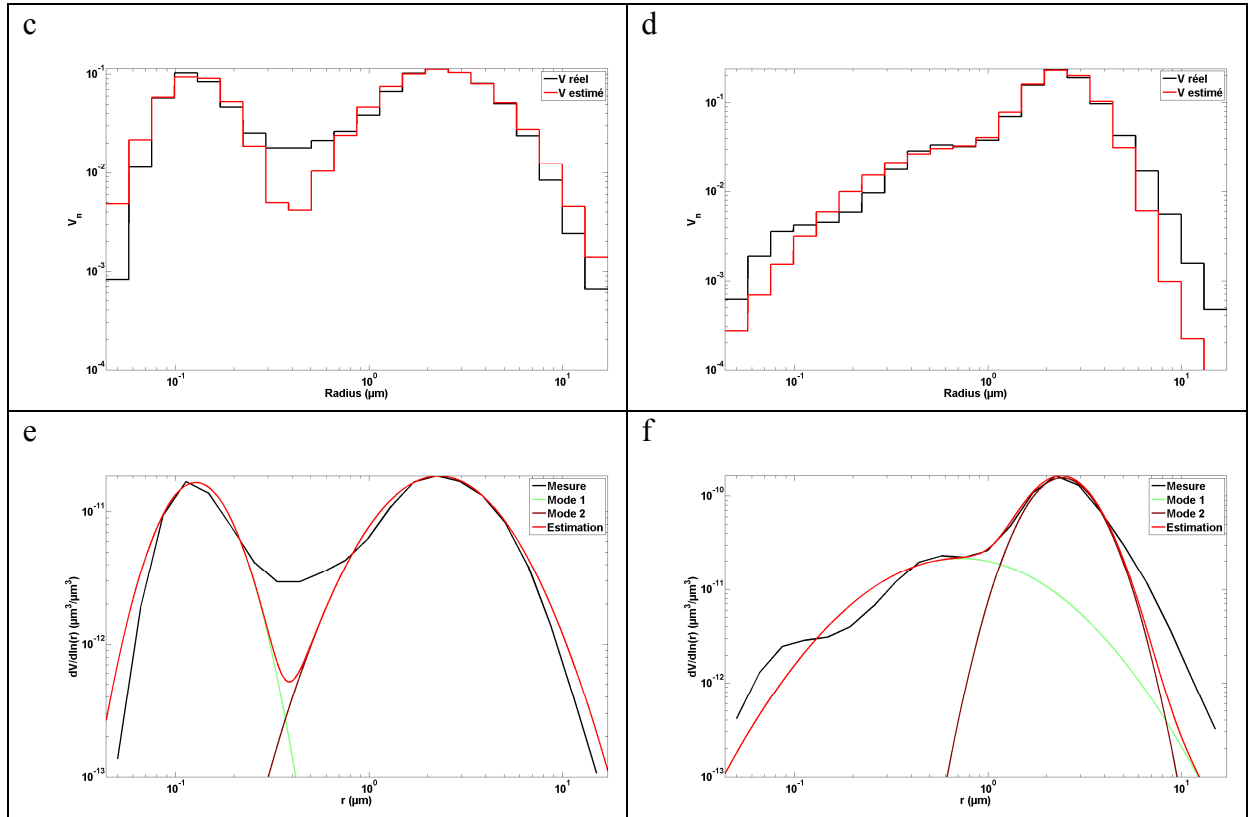


Fig. 3.19 : Décomposition de distributions volumiques en taille fournies par AERONET en deux modes lognormaux pour des aérosols de feux de biomasse (a,c,e) et des poussières désertiques (b,d,f) au Niger. Les distributions brutes fournies par AERONET (a,b) sont intégrées sur chaque classe de taille pour restituer les fonctions de partition normalisées (c,d) qui sont approchées par des courbes théoriques (rouge). Les distributions lognormales obtenues (e,f) sont comparées à la distribution observée. Pour les calculs une hauteur de 5 km a été introduite ; elle correspond à la hauteur des couches observées sur les profils lidar au-dessus de Niamey. Le rapport en concentration volumique d'aérosol grossier et d'aérosol fin est de 1.8 pour les BB et de 3 pour les Dust.

La distribution volumique en taille peut être obtenue avec une incertitude de 15 à 35% pour  $0.1 \mu\text{m} < r < 7 \mu\text{m}$ , et de 15 à 100 % dans les autres cas (Dubovik et al., 2000). Ces distributions sont représentatives de l'ensemble de la colonne atmosphérique, contrairement aux mesures in situ localisées en surface qui ne fournissent souvent qu'une information ponctuelle, parfois décorrélée des altitudes supérieures (Dulac et al., 2001). Toutefois, la seule mesure photométrique ne permet pas d'échantillonner l'aérosol situé dans la CLA ou transporté dans la troposphère libre. Dans les campagnes de terrain, on préfère alors utiliser des observations in situ aéroportées (Chapitres 5 et 6) qui fournissent une information sur les particules résolue en altitude. Sur de longues périodes et en dehors des campagnes de mesure en revanche, la mesure photométrique constitue un apport incontestable à la connaissance des propriétés des aérosols dans la troposphère.

Les instruments passifs décrits précédemment ne fournissent cependant aucune information sur la distribution verticale des couches d'aérosols. On fait alors appel à la télédétection active, très utilisée au cours de cette étude.

## 3.3 Télédétection active – Mesure LIDAR

---

### 3.3.1 Principe

Tandis que les instruments de mesure in situ déterminent les propriétés optiques des aérosols localement et que les observations passives fournissent une information sur leur contenu intégré sur la colonne d'air, le lidar est l'unique technique permettant l'obtention de la distribution verticale des particules. Le lidar est l'acronyme du terme anglo-saxon « Light Detection and Ranging » qui signifie « Détection et télémétrie à l'aide de la lumière ». Cet instrument est né dans les années 60 après la découverte de l'effet laser. Le lidar est un système de télédétection active constitué d'un laser qui émet un signal à des longueurs d'onde présentant un intérêt atmosphérique et d'un dispositif de réception et de traitement de ce signal (Collis, 1969). Le principe de la mesure lidar est similaire à celui du RADAR (Radio Detection And Ranging) ou du SODAR (SOund Detection And Ranging) mais avec un rayonnement électromagnétique polarisé qui peut aller de l'ultraviolet à l'infrarouge thermique. Un faisceau laser est envoyé dans le milieu où il interagit par diffusion et absorption avec les aérosols et les molécules présents dans le milieu. Une fraction de la lumière est rétrodiffusée vers un télescope ou l'équivalent (système de lentilles) pour constituer le signal lidar. Le signal est détecté par un photomultiplicateur ou une photodiode à avalanche, puis analysé, numérisé et enregistré grâce à une chaîne électronique. Le temps écoulé entre l'émission de l'onde et sa réception fournit la distance de la cible à l'émission laser. L'amplitude du signal et sa dépendance spectrale donnent une indication sur sa nature.

La télédétection active est une méthode de mesure non intrusive, c'est-à-dire qu'elle ne perturbe pas les propriétés fondamentales du milieu sondé, ce qui est un avantage indéniable dans l'observation de la pollution atmosphérique. Ce sont les propriétés optiques de l'aérosol ou des nuages ou bien les concentrations de certaines molécules d'intérêt comme l'ozone ou encore les variables météorologiques (pression, températures, humidité, vent) qui peuvent être ainsi restituées dans leur milieu naturel et analysées. Elle présente également l'avantage de donner un accès quasiment direct aux informations structurales (altitude, épaisseur) des couches diffusantes sur toute une colonne d'air et non de façon ponctuelle. Le Lidar peut effectuer ses mesures au sol, mais il peut également être embarqué sur un avion, un ballon, un bateau, une navette spatiale ou même un satellite (e.g. mission CALIPSO) (Fig. 3.20). Cette information peut être directement utilisée par les modèles de chimie transport ou les modèles de circulation générale. Elle prend tout son intérêt lorsqu'elle est utilisée en synergie avec des mesures effectuées à partir d'autres capteurs. La mesure lidar constitue alors un complément utile aux données issues des observations in situ ou passives et fournit des informations innovantes pour une meilleure compréhension de l'atmosphère. Elle trouve de nombreuses applications en qualité de l'air par le suivi des panaches de pollution urbaine ou industrielle, mais également pour l'étude du transfert radiatif.

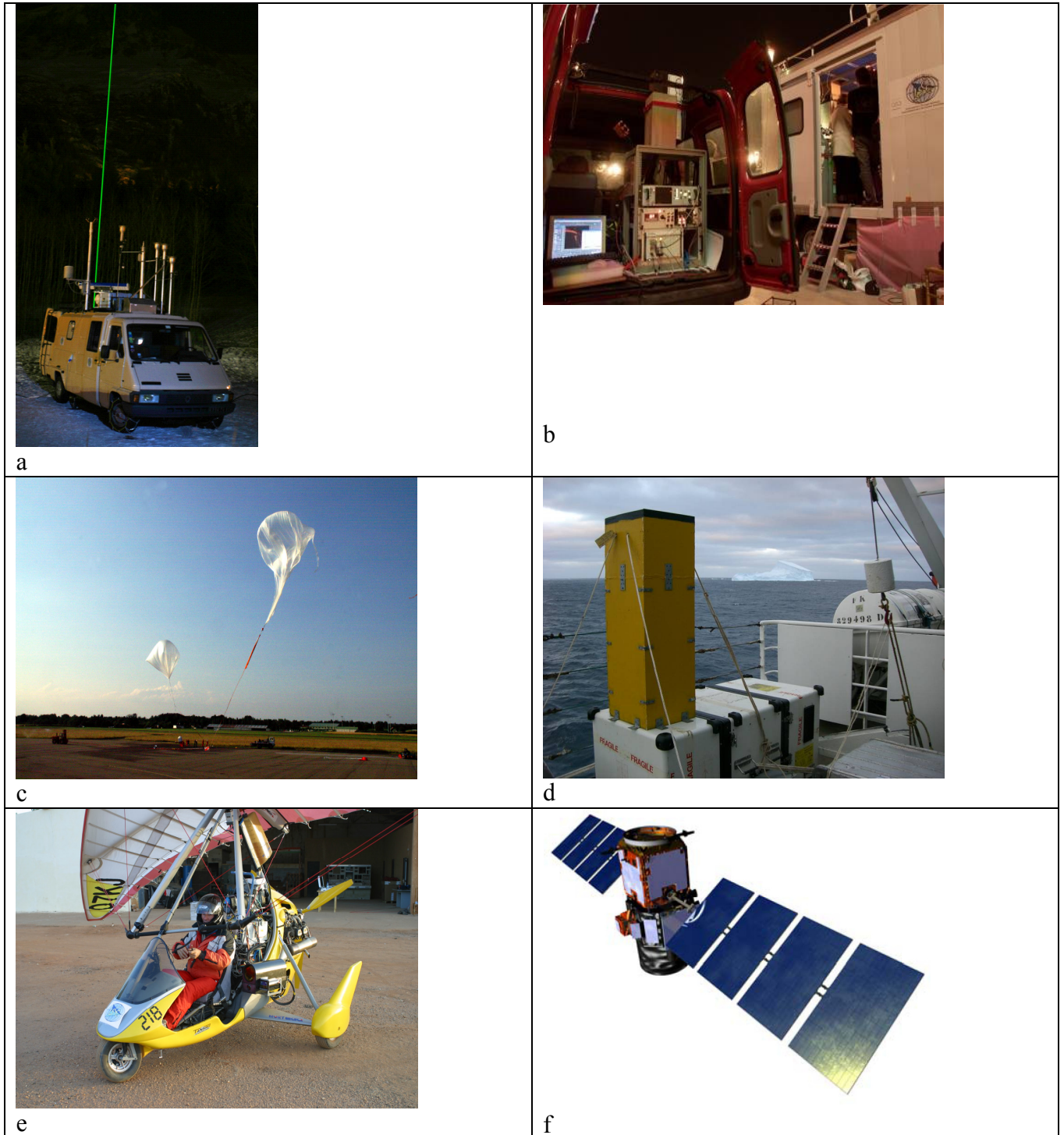


Fig. 3.20 : Exemples de plateformes pouvant embarquer un lidar. (a) : lidar LESAA dans camion, (b) : lidar LAUVA en voiture, (c) : lidar LIBAP sur ballon CNES, (d) : lidar LAUVA sur bateau (Marion Dufresne), (e) : lidar LAUVA sur ULM, (f) : lidar CALIOP sur plateforme spatiale CALIPSO.

On peut distinguer plusieurs familles de lidar qui se différencient par le mode d'interaction établi entre la propagation de l'onde lumineuse du laser et les molécules et particules de l'atmosphère :



- le lidar à rétrodiffusion sensible à la réflectivité des couches atmosphériques traversées par le faisceau laser et à l'atténuation du rayonnement optique le long du trajet aller-retour,
- le lidar à absorption différentielle (DIAL pour « Differential Absorption Lidar ») qui repose sur l'émission simultanée de deux impulsions laser de longueurs d'onde proches pour déterminer la concentration d'un polluant gazeux dans l'atmosphère, ou même la température (si l'on choisit une molécule comme l'oxygène dont la densité est connue),
- le lidars Doppler mesurant la vitesse radiale du vent par le décalage de longueur d'onde entre les ondes émises et reçues,
- le lidar Raman qui permet la mesure de la concentration chimique d'un élément, le rapport d'humidité ou la température en repérant le décalage en fréquence lié à une diffusion anélastique de la part de la cible (raies Stokes et anti-Stokes caractéristiques de la molécule rencontrée).
- le lidar femtoseconde détecte la présence de gaz polluants sur une grande étendue spectrale, de l'UV à l'IR jusqu'à 5  $\mu\text{m}$ . Les impulsions ultrabrèves (100 fs) produisent en effet de fortes puissances de l'ordre du Téra watt qui induisent une variation spatiale de l'indice de réfraction non linéaire responsable de la focalisation par effet Ker et un effet de diffraction qui, par compensation, permettent de guider la lumière sur de longues distances, mais aussi une variation temporelle de la phase participant à la création d'un continuum de lumière blanche. C'est la rétrodiffusion de ce continuum qui est analysée par un spectromètre couplé à un télescope.

Les lidar utilisés dans cette thèse sont des lidars à rétrodiffusion Mie, qui sont détaillés dans la suite. Une voie de détection Raman azote ou vapeur d'eau a été ajoutée vers la fin de cette thèse, mais les résultats n'ont pas encore été analysés.

#### 3.3.2 Lidar à rétrodiffusion Mie

On considère dans cette étude exclusivement des lidars à rétrodiffusion Mie caractérisés par une émission laser pulsée, dans une configuration monostatique paraxiale (i.e. non coaxiale) car les axes d'émission du faisceau laser et de réception du télescope sont pratiquement parallèles, et une détection incohérente sensible au signal brut, par opposition à une détection hétérodyne qui combine le signal reçu à celui d'un oscillateur local. Le lidar à rétrodiffusion est le plus ancien (1968) et le plus simple des lidars. Il permet l'étude des processus de diffusions élastiques dans l'atmosphère, accompagné d'une détection directe de la puissance rétrodiffusée. L'atmosphère peut ainsi être sondée pour restituer les propriétés des aérosols ou des nuages. La plupart des lidars à rétrodiffusion offrent en plus la possibilité de mesurer certaines propriétés de polarisation du faisceau rétrodiffusé. Un schéma de fonctionnement du lidar est présenté sur la Fig. 3.21.

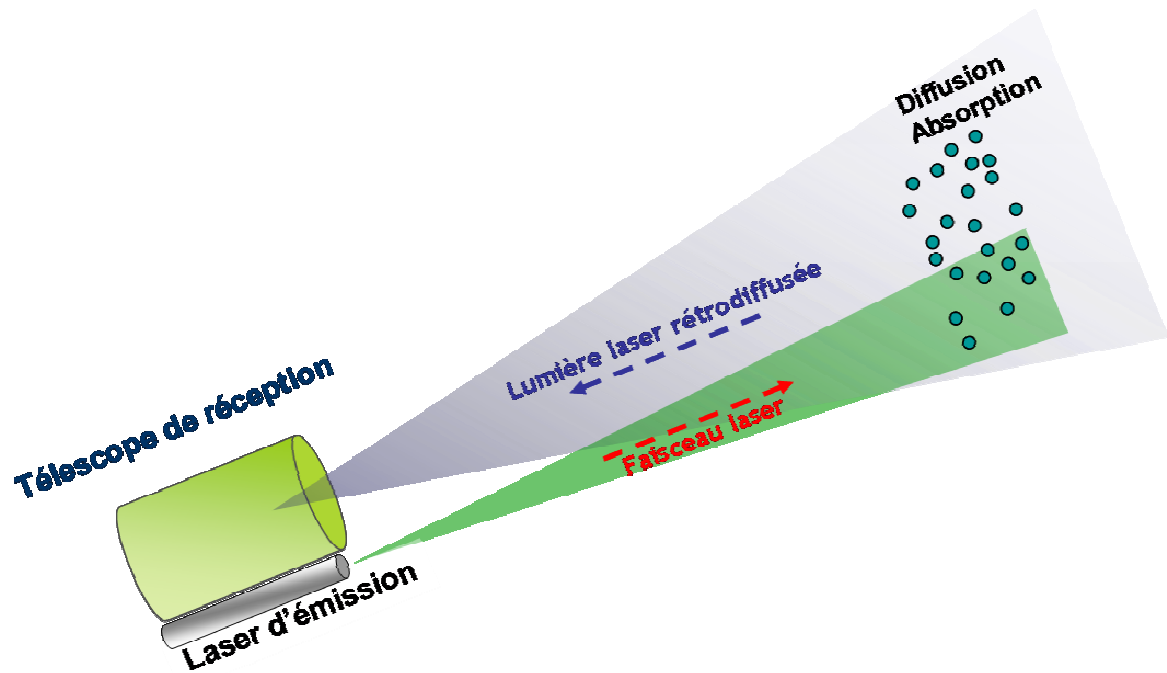


Fig. 3.21 : Principe de fonctionnement du lidar à rétrodiffusion Mie.

Il est constitué de plusieurs éléments :

- le module d'émission composé de la source laser et du dispositif optomécanique dirigeant le faisceau vers les cibles atmosphériques est caractérisé par l'énergie émise, la longueur d'onde, la fréquence de tirs, la durée d'impulsion, la largeur et la stabilité spectrales de la raie laser, et le rendement optique.
- le module de détection composé d'une optique collectant le signal rétrodiffusé, de filtres interférentiels, d'une séparatrice de polarisation et d'un détecteur (le photomultiplicateur) réalisant la conversion en signal électrique. Le télescope de réception est caractérisé par sa surface collectrice, son champ de vue et son rendement optique. Le photomultiplicateur est caractérisé par son rendement quantique et sa puissance équivalent de bruit (« Noise equivalent power » :  $NEP$ ). Lorsque le flux de photons incidents atteignant la cathode du photomultiplicateur est inférieur au seuil de saturation ( $\sim 300$  photons par  $\mu s$ ) pour que le nombre de photoélectrons arrachés par effet photoélectrique puisse être considéré linéaire avec le nombre de photons incidents, on utilise le mode de détection « comptage de photons ». Un compteur enregistre alors le nombre d'impulsions électriques générées par les photoélectrons. Dans le cas où le nombre de photons peut aboutir à une saturation, on a recours au mode de détection analogique. Ce dernier mode de détection a été le plus utilisé dans ce travail. Le courant moyen de sortie du détecteur est ici échantillonné par un analyseur de transitoires.
- le module d'acquisition composé d'un préamplificateur du signal électrique, de filtrages, d'un convertisseur analogique-numérique et d'un dispositif de stockage. Le préamplificateur est caractérisé par sa bande passante permettant de conserver la résolution verticale de la mesure lidar, son gain et sa puissance équivalente de bruit ( $NEP_A$ ). Le convertisseur analogique-numérique est caractérisé par la fréquence d'échantillonnage dans le respect du théorème de Shannon.

La largeur de l'impulsion lumineuse  $\Delta t_0$  varie de 10 fs à 0,1  $\mu$ s à pour des énergies de quelques centaines de  $\mu$ J à plusieurs centaines de mJ. Etant donné qu'un laser pulsé est utilisé et que les mesures sont faites à des temps décalés par rapport à l'émission laser ( $\Delta t'$ ), sachant que la vitesse de propagation de l'onde lumineuse dans l'atmosphère est celle de la lumière  $c$ , il est possible de déterminer à quelle altitude se situent les éléments qui ont rétrodiffusé la lumière (nuages, particules...). La résolution spatiale  $\Delta z$  est alors définie par :

$$\Delta z = \mu \cdot \frac{c \cdot (\Delta t' + \Delta t_0)}{2} \quad (3.14)$$

$\Delta t'$  désigne la durée de réception en mode comptage de photons ( $\sim 1 \mu$ s) ou la durée d'échantillonnage en mode analogique ( $\sim 100$  ns - 1  $\mu$ s). Généralement  $\Delta t'$  est largement supérieur à  $\Delta t_0$ , ce qui permet d'écrire :

$$\Delta z \approx \mu \cdot \frac{c \cdot \Delta t'}{2} \quad (3.15)$$

Pour un lidar en visée verticale, la résolution horizontale est déterminée par le temps nécessaire à la mesure multiplié par la vitesse d'advection de l'air. L'accumulation de plusieurs mesures indépendantes permet de réduire l'erreur statistique et d'augmenter le rapport signal à bruit (« signal-to-noise ratio » : SNR) qui s'exprime comme le rapport entre le signal utile et le bruit de mesure.

#### 3.3.3 Instruments utilisés dans ce travail

Deux systèmes lidar ont été opérationnels durant cette étude :

- Le lidar LESAA (Lidar pour l'Etude et le Suivi de l'Aérosol Atmosphérique) développé par le CEA en collaboration avec le CNES (Centre National d'Etudes Spatiales) mesure la réflectivité atmosphérique à 532 et 1064 nm dans la basse troposphère au-dessus de zones polluées (Chazette et al., 2005b ; Raut and Chazette, 2007). Il peut être embarqué dans un petit camion et permet le suivi de panaches de polluants émis par les villes ou les zones industrielles. L'optique de réception permet la séparation du faisceau rétrodiffusé en 2 voies selon son état de polarisation : l'une des deux voies est le signal polarisé parallèlement au faisceau émis par la source laser, l'autre voie détecte le signal polarisé perpendiculairement (Fig. 3.22).



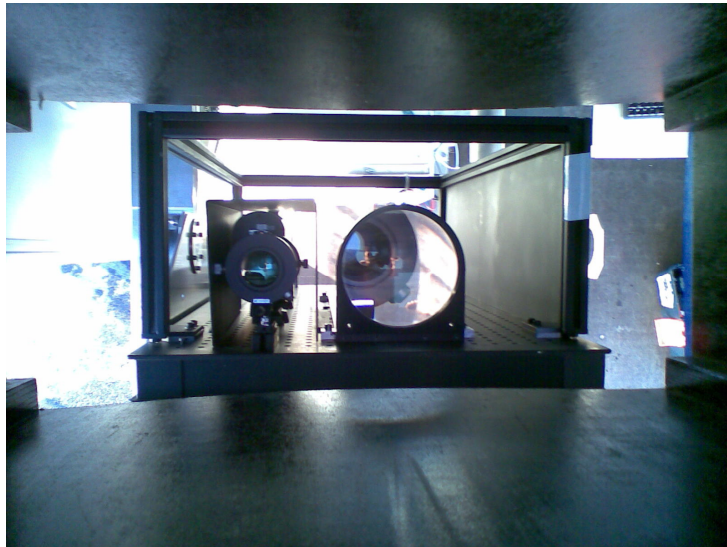


Fig. 3.22 : Système lidar LESAA, vue de haut.

- Le lidar LAUV(A) (Lidar Aérosol Ultra-Violet (Aéroporté)) développé par le CEA et le CNRS permet de suivre la dispersion des aérosols à petite échelle (échelle de la rue) et dans la CLA (Raut and Chazette, 2007 ; Chazette, 2007b). Ce système est tout à fait adapté à l'étude de la qualité de l'air en régions urbaines et périurbaines. C'est un système compact et sa souplesse d'utilisation lui permet d'être embarqué sur petit porteur (ULM (Ultra-Léger Motorisé), hélicoptère, voiture) ou gros porteur (bateau, avion de recherche type ATR42) afin d'accéder à des échelles spatiales allant de l'échelle locale à l'échelle régionale (Fig. 3.20). Le Lidar a été conçu en sécurité oculaire pour un fonctionnement aussi bien à la verticale qu'à l'horizontale. Une version industrielle du LAUVA est actuellement commercialisée par la société française LEOSPHERE ([www.leosphere.com](http://www.leosphere.com)) sous le nom de Easy Lidar ®. La Fig. 3.23 présente les principaux éléments techniques constitutifs du lidar LAUVA. Il utilise un système d'acquisition PXI de National Instrument (PCI eXtensions for Instrumentation).

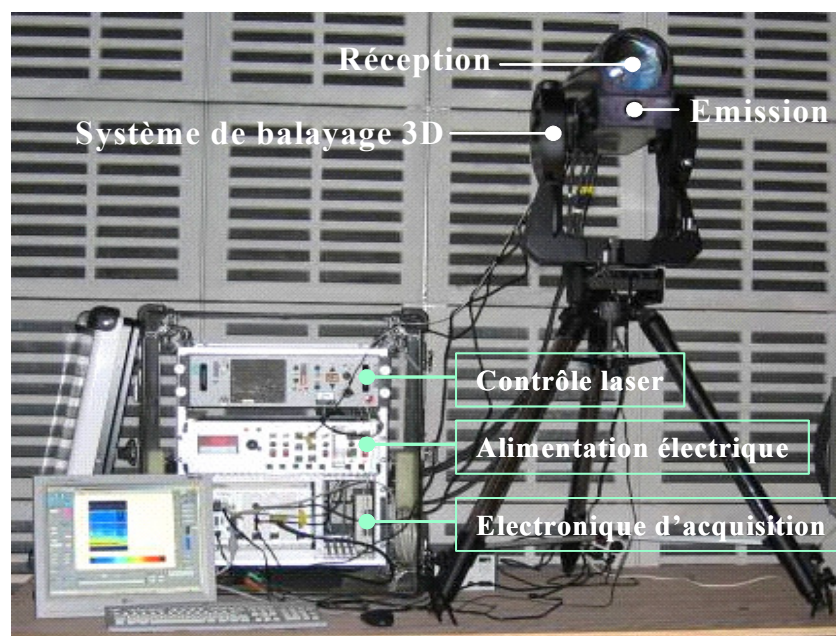


Fig. 3.23 : Ensemble des éléments constitutifs du lidar LAUVA.

Les caractéristiques générales des deux systèmes lidar sont décrites dans le Tableau 3.1. Tous deux utilisent un laser Nd-YAG pompé par lampes flash. La longueur d'onde fondamentale est de 1064 nm. La mise à disposition des longueurs d'onde 355 nm et 532 nm repose sur des cristaux doubleur ou tripleur de fréquence. La fréquence des impulsions est de 20 Hz, leur durée est de  $\sim 7$  ns.

Tableau 3.1 : Caractéristiques techniques des lidars LAUVA et LESAA

Caractéristiques	Lidar LAUVA	Lidar LESAA
Longueur d'onde (nm)	355	532
Energie moyenne par pulse (mJ)	16	160
Fréquence de tir (Hz)	20	20
Durée du pulse d'émission (ns)	$\sim 6$	$\sim 5$
Diamètre du faisceau (mm)	$\sim 20$	$\sim 20$
Divergence du faisceau (mrad)	$< 0.2$	$< 0.2$
Diamètre de réception (mm)	150	200
Largeur de bande du filtre interférentiel (nm)	0.5	0.5
Champ de vue (mrad)	$\sim 6$	$\sim 6$
Détecteur	Photomultiplicateur	Photomultiplicateur
Mode de détection	Analogique	Analogique
Résolution verticale (m)	1.5	7.5
Dimension de la tête optique (cm x cm x cm) (Hauteur x largeur x profondeur)	$\sim 45 \times 28 \times 18$	$\sim 100 \times 50 \times 20$
Masse de la tête optique (kg)	$\sim 9$	$\sim 20$
Masse de l'électronique (kg)	$\sim 20$	$\sim 40$
Tension électrique (V)	220	220
Puissance consommée (W)	$< 500$	$< 500$

Nous avons également utilisé les mesures réalisées par d'autres lidars :

- Le lidar LEANDRE-1 (Lidar aéroporté pour l'Etude des Aérosols, des Nuages, de la Dynamique, du Rayonnement et du cycle de l'Eau) embarqué à bord de l'avion de recherche ARAT utilise les aérosols submicroniques comme traceurs pour identifier les structures de la basse troposphère à 532 et 1064 nm avec une résolution verticale de 15 m et une résolution horizontale de 150 m (Flamant and Pelon, 1996 ; Pelon et al., 2002).
- Le lidar de la SNU (Séoul National University) utilise également un laser Nd-YAG ayant pour énergie 20 mJ par pulse pour fréquence de tirs 10 Hz et équipé d'un système de détection analogique. Il fonctionne aux deux longueurs d'onde 532 et 1064 nm et mesure le rapport de dépolarisation à 532 nm (Kim et al., 2006; Shimizu et al., 2004; Sugimoto et al., 2002, 2005, 2006). Il a été développé par le NIES (Japanese National Institute for Environmental Studies) et appartient au réseau lidar japonais (Sugimoto et al., 2006) et au réseau sur la mesure de poussières désertiques en Asie (Murayama et al., 2001).
- La charge utile du satellite CALIPSO est composée d'un système lidar appelé CALIOP, un radiomètre imageur à 3 canaux dans l'IR et une caméra grand champ. CALIOP est un instrument à visée au nadir construit autour d'un laser Nd-YAG pompé par diode. Alors que CALIOP émet un rayonnement polarisé à 1064 et 532 nm avec une énergie de pulse de 110 mJ et une fréquence de tir de 20.25 Hz, seul le canal à 532 nm est utilisé pour discriminer la polarisation à la réception (Winker et al., 2004, 2007). La résolution spatiale est variable avec l'altitude : 30 m (60 m à 1064 nm)

verticalement et 33 m horizontalement jusqu'à 8.2 km d'altitude au-dessus du niveau de la mer, 60 m verticalement et 1 km horizontalement entre 8.2 et 10.2 km d'altitude.

Les lidars utilisés dans le cadre de cette thèse émettent aux longueurs d'ondes de 355 nm, 532 nm et de 1064 nm. Pour ces longueurs d'ondes, seule la diffusion élastique sera considérée, ces longueurs d'ondes ne correspondant à aucune raie d'absorption d'un des constituants de l'atmosphère. En conséquence, les seuls processus à prendre en compte sont la diffusion par les aérosols et par les molécules.

#### 3.3.4 Théorie du signal lidar

Pour évaluer la réponse du milieu sondé à une impulsion laser, il faut en toute rigueur envisager pour chaque photon émis par le laser, une succession de diffusions élastiques. Cela exige une modélisation complète de la géométrie de sondage, ainsi que de la fonction de phase dans toutes les directions de diffusion et dans tout l'espace, et la mise en œuvre de modèles et algorithmes complexes. Une expression très simple peut cependant être obtenue si l'on fait l'hypothèse qu'un photon diffusé dans une direction autre que celle du détecteur ne sera pas collecté ultérieurement. Seuls sont alors détectés les photons n'ayant interagi avec le milieu de propagation que par une rétrodiffusion. On ne tiendra pas compte dans ce qui suit de la diffusion multiple, l'atmosphère traversée par le faisceau lumineux étant supposée peu dense. En pratique, les phénomènes de diffusion multiple peuvent être négligés lorsque le champ de vue du télescope est petit (quelques mrad) et que la distance aux diffuseurs n'est pas trop importante (<30 km).

En reprenant la démarche de l'Eq. 2.58 pour la puissance  $P$  dans le cas d'une atmosphère plan-parallèle et en négligeant le flux lumineux propre de l'atmosphère pour la partie propagation, on peut écrire :

$$dP(\lambda, z, \mu) = -\frac{\alpha_{ext}(\lambda, z)}{\mu} \cdot P(\lambda, z, \mu) \cdot dz \quad (3.16)$$

En intégrant l'expression précédente en coordonnées cylindriques  $(\rho', \varphi')$  par rapport à l'altitude  $z$  et en normalisant par la surface du faisceau laser  $\pi w(z)^2$  (où  $w(z)$  est le rayon caractéristique du faisceau qui tient compte de sa divergence), on obtient l'intensité incidente  $I_i$  :

$$I_i(\lambda, \rho', \varphi', z) = f_i(\rho', \varphi', z) \cdot \frac{P(\lambda, \rho', \varphi', z)}{\pi \cdot w(z)^2} \quad (3.17)$$

Soit :

$$I_i(\lambda, \rho', \varphi', z) = \frac{P_0(\lambda)}{\pi \cdot w(z)^2} \cdot f_i(\rho', \varphi', z) \cdot \exp\left(-\frac{1}{\mu} \cdot \tau(\lambda, z^*, z)\right) \quad (3.18)$$

où  $P_0$  désigne la puissance d'émission du laser,  $z^*$  la hauteur de position du lidar et  $f_i$  le facteur de répartition de l'intensité qui prend en compte l'anisotropie énergétique du faisceau (Measures, 1984 ; Chazette, 1990).

Le faisceau lumineux va rencontrer sur son trajet des molécules et des particules avec lesquelles il interagit. L'interaction qui nous intéresse ici est liée au phénomène de diffusion. La puissance diffusée  $P_{scat}$  dans un volume élémentaire s'exprime sous la forme :

$$d^4P_{scat}(\lambda, \rho', \phi', z) = I_i(\lambda, \rho', \phi', z) \cdot \sum_j N_j \cdot \frac{\partial \sigma_{scat,j}(\lambda, \pi)}{\partial \Omega_{scat}} \cdot \rho' \cdot d\rho' \cdot d\phi' \cdot \frac{dz}{\mu} \cdot d\Omega_{scat} \quad (3.19)$$

où  $\Omega_{scat}$  est l'angle solide sous lequel a lieu la diffusion,  $N_j$  est le nombre de constituants  $j$  par unité de volume et  $\partial \sigma_{scat,j}(\lambda, \pi) / \partial \Omega_{scat}$  définie à partir de l'Eq. 2.43 est la section efficace différentielle de rétrodiffusion ( $\theta = \pi$ ) du constituant  $j$ . En intégrant cette expression sur l'ensemble de la couche atmosphérique d'épaisseur  $dz$  et d'altitude  $z$ , et en tenant compte de la deuxième traversée du faisceau rétrodiffusé et de la fraction de l'intensité rétrodiffusée  $\xi(\lambda, \rho', z)$  qui parviendra au récepteur après traversée de l'optique du télescope, on en déduit la puissance instantanée parvenant au détecteur :

$$dP_{scat}(\lambda, z) = \frac{P_0(\lambda)}{\pi \cdot w(z)^2} \cdot \frac{\mu \cdot A \cdot dz}{(z - z^*)^2} \cdot \exp\left(-\frac{2}{\mu} \cdot \tau(\lambda, z^*, z)\right) \cdot \sum_j \beta_j(\lambda, z) \cdot \int_0^{2\pi} \int_0^\pi f_i(\rho', \phi', z) \cdot \xi(\lambda, \rho', z) \cdot \rho' \cdot d\rho' \cdot d\phi' \quad (3.20)$$

avec :

$$\beta_j(\lambda, z) = N_j(z) \cdot \frac{\partial \sigma_{scat,j}(\lambda, \pi)}{\partial \Omega_{scat}} \quad (3.21)$$

le coefficient de rétrodiffusion volumique et  $A$  est la surface collectrice du télescope de réception orthogonale à la direction de rayonnement ( $m^2$ ). On note  $F(\lambda, z)$  le facteur géométrique de recouvrement :

$$F(\lambda, z) = \frac{\int_0^{2\pi} \int_0^\pi f_i(\rho', \phi', z) \cdot \xi(\lambda, \rho', z) \cdot \rho' \cdot d\rho' \cdot d\phi'}{\pi \cdot w(z)^2} \quad (3.22)$$

qui tient compte de l'atténuation géométrique et de l'atténuation optique supposée constante sur la largeur spectrale du rayonnement rétrodiffusé. Le signal reçu dans les premiers mètres sondés ne correspond en effet pas à la totalité du signal que devrait recevoir le lidar du fait d'un recouvrement partiel. Ce facteur de recouvrement dépend de la géométrie du système (Fig. 3.24).

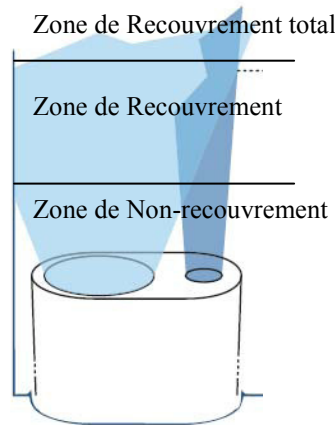


Fig. 3.24 : Représentation schématique de la zone de recouvrement.

Ce facteur est égal à 1 lorsque le recouvrement entre l'émission et la réception est parfait, il est inférieur à 1 dans le cas contraire. A proximité de l'émission laser, ce facteur est même nul, entraînant également la nullité du signal lidar : aucune information sur l'atmosphère n'est fournie par le Lidar dans cette « zone aveugle ».

A partir de la relation 3.20, on obtient puissance diffusée d'une tranche d'atmosphère  $dz$  située à l'altitude  $z$  parvenant au détecteur sous la forme :

$$dP_{scat}(\lambda, z) = P_0(\lambda) \cdot \underbrace{\frac{\mu \cdot A}{(z - z^*)^2} \cdot F(\lambda, z) \cdot \sum_j \beta_j(\lambda, z) \cdot \exp\left(-\frac{2}{\mu} \cdot \tau(\lambda, z^*, z)\right)}_{h(t) \cdot dt} \cdot dz \quad (3.23)$$

où la variable d'intégration  $dz$  peut s'exprimer en fonction du temps, d'après l'Eq. 3.15 :

$$dz = \mu \cdot \frac{c}{2} \cdot dt \quad (3.24)$$

Le laser étant pulsé, il émet une impulsion de durée  $\Delta t_0$  centrée en  $t_0$  et d'énergie  $E_0$  telle que :

$$P_0(\lambda, t) = E_0(\lambda, t_0) \cdot \delta(t - t_0) \quad (3.25)$$

La puissance rétrodiffusée vers le télescope reçue à l'instant  $t$  est donc :

$$P_{scat}(\lambda, t) = \int_{t_0 - \frac{\Delta t_0}{2}}^{t_0 + \frac{\Delta t_0}{2}} E_0(\lambda, t_0) \cdot \delta(t' - t_0) \cdot h(t - (t' - t_0)) \cdot dt' \quad (3.26)$$

$$P_{scat}(\lambda, z) = E_0(\lambda, t_0) \cdot \frac{\mu^2 \cdot c \cdot A}{2 \cdot (z - z^*)^2} \cdot F(\lambda, z) \cdot \sum_j \beta_j(\lambda, z) \cdot \exp\left(-\frac{2}{\mu} \cdot \tau(\lambda, z^*, z)\right) \quad (3.27)$$

En mode analogique, la tension de sortie devient alors :

$$U(\lambda, z) = R \cdot G \cdot G_A \cdot E_0(\lambda, t_0) \cdot \frac{\mu^2 \cdot c \cdot A}{2 \cdot (z - z^*)^2} \cdot F(\lambda, z) \cdot \sum_j \beta_j(\lambda, z) \cdot \exp\left(-\frac{2}{\mu} \cdot \tau(\lambda, z^*, z)\right) \quad (3.28)$$

où  $R$  est la résistance de charge de réception (en  $\Omega$ ),  $G_A$  le gain du préamplificateur et  $G$  le gain ou sensibilité du photomultiplicateur (en  $A \cdot W^{-1}$ ) qui tient compte du rendement quantique :

$$G = \frac{\eta \cdot e \cdot \lambda}{h \cdot c} \cdot G_i \cdot r_{phot} \quad (3.29)$$

avec  $\eta$  l'efficacité quantique du tube du photomultiplicateur,  $G_i$  le gain intrinsèque du tube du photomultiplicateur caractérisant l'amplification des différentes dynodes,  $r_{phot}$  l'efficacité de collection du photomultiplicateur,  $e$  la charge élémentaire de l'électron ( $1.6 \times 10^{-19}$  C) et  $h$  la constante de Planck ( $6.62 \times 10^{-34}$  J.s).

Le signal lidar de l'Eq. 3.28 prend également en compte les photons issus de la luminance du ciel à la même longueur d'onde considérés comme une source de lumière parasite, et donc de bruit. On écrit alors le signal enregistré par les détecteurs  $S_0$  sous la forme :

$$S_0(\lambda, z) = C(\lambda) \cdot \frac{\mu^2}{(z - z^*)^2} \cdot F(\lambda, z) \cdot \beta(\lambda, z) \cdot \exp\left(-\frac{2}{\mu} \cdot \int_{z^*}^z \alpha_{ext}(\lambda, z') \cdot dz'\right) + S_{FC}(\lambda, z) \quad (3.30)$$

où  $C(\lambda)$  représente la constante système (ou constante de calibration) qui contient tous les termes de l'équation lidar indépendants de l'altitude  $z$ ,  $\alpha_{ext}$  et  $\beta$  les coefficients d'extinction volumique totale et de rétrodiffusion totale :

$$\beta(\lambda, z) = \sum_j \beta_j(\lambda, z) \quad (3.31)$$

$S_{FC}$  est appelé signal de fond de ciel et donné en mode analogique par (Measures, 1984) :

$$S_{FC}(\lambda, z) = A \cdot \pi \cdot G_A \cdot G \cdot F(z) \cdot \left(\frac{\phi}{2}\right)^2 \cdot \Delta\lambda \cdot L_C(\lambda) \quad (3.32)$$

avec  $\Delta\lambda$  la bande passante du filtre interférentiel à la réception,  $L_C(\lambda)$  est la luminance du ciel à la longueur d'onde  $\lambda$  (luminance solaire diffusée ou réfléchi) et l'ouverture plein angle  $\phi$  du télescope (champ de vue de détection). Autrement dit :

$$S_0(\lambda, z) = R \cdot \frac{\eta \cdot e \cdot \lambda}{h \cdot c} \cdot G_i \cdot r_{phot} \cdot G_A \cdot A \cdot F(\lambda, z) \cdot \left[ E_0(\lambda, t_0) \cdot \frac{\mu^2 \cdot c}{2 \cdot (z - z^*)^2} \cdot \beta(\lambda, z) \cdot \exp\left(-\frac{2}{\mu} \cdot \tau(\lambda, z^*, z)\right) + \pi \cdot \left(\frac{\phi}{2}\right)^2 \cdot \Delta\lambda \cdot L_C(\lambda) \right] \quad (3.33)$$

En pratique, la contribution du fond de ciel est calculée à haute altitude où on peut considérer que seuls les photons provenant du rayonnement solaire sont comptés. Une alternative à cette technique consiste à utiliser un mode « pre-trigger », avec le LAUVA par exemple, où l'on détermine le signal du fond de ciel en mesurant le signal reçu avant l'émission laser (déclenchement Q-switch).

Dans la suite de ce travail, on préfère utiliser au signal brut  $S_0$  le signal  $S_2$  corrigé de la distance et du signal de fond de ciel :

$$S_2(\lambda, z) = C(\lambda) \cdot F(\lambda, z) \cdot \beta(\lambda, z) \cdot \exp\left(-\frac{2}{\mu} \cdot \int_{z^*}^z \alpha_{ext}(\lambda, z') \cdot dz'\right) \quad (3.34)$$

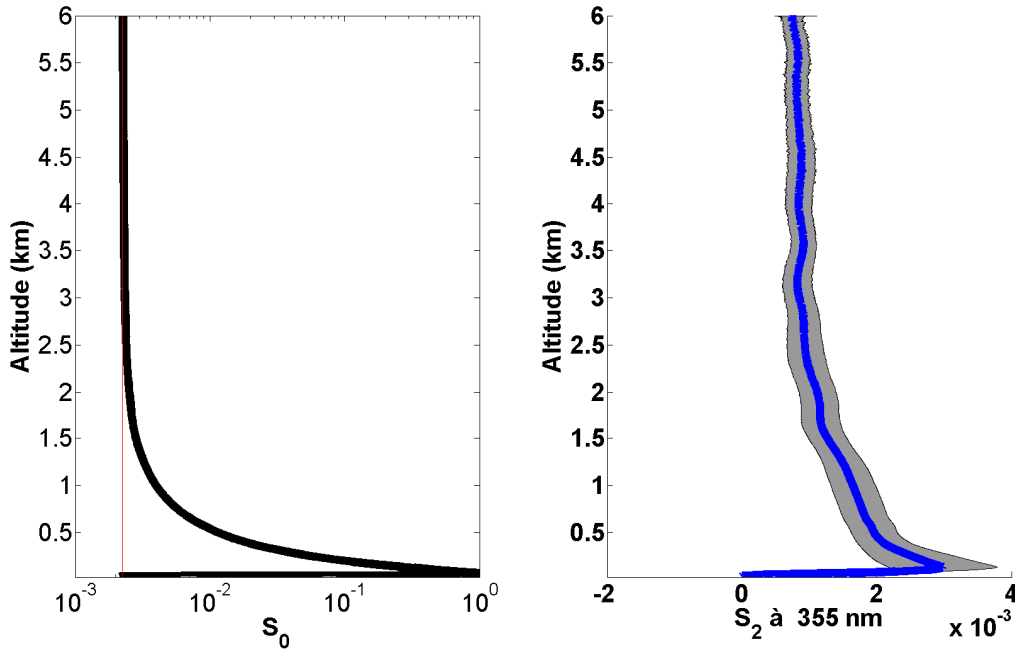


Fig. 3.25 : Ensemble des profils obtenus par le lidar LAUVA en visée verticale le 26 mai 2005 à Paris. A gauche, moyenne des profils bruts (noir) et signal du fond de ciel (rouge). A droite, moyenne des profils corrigés  $S_2$  et écart-type illustrant la dispersion dans la journée.

Notons que le profil obtenu dépend de l'état de polarisation. On peut alors obtenir des informations additionnelles sur la forme des diffuseurs en comparant les profils lidar à deux polarisations différentes. Le paramètre adapté est le rapport de dépolarisation défini par :

$$\delta(\lambda, z) = \frac{S_2^\perp(\lambda, z)}{S_2^{\parallel}(\lambda, z)} \quad (3.35)$$

$S_2^{\parallel}$  et  $S_2^\perp$  désignent respectivement les signaux dans le même axe de polarisation de l'émission laser polarisée linéairement et dans l'axe perpendiculaire. Dans la suite,  $S_2$  désigne la somme de ces deux contributions.

#### 3.3.5 Facteur de recouvrement

Le facteur de recouvrement qui apparaît dans l'Eq. 3.34 représente une incertitude importante dans le profil atmosphérique entre la surface et une certaine altitude (Fig. 3.25) qui dépend de la configuration géométrique du système (~100-200 m pour le LAUVA et le LESAA). Il peut être déterminé théoriquement par la connaissance précise du champ de vue du télescope, de la distance télescope-faisceau et de la divergence du faisceau laser (Measures, 1984 ; Chazette, 2003). En pratique, on cherche à compenser le signal lidar dans les premiers mètres, et donc à obtenir  $F$ , en considérant un mélange homogène dans cette zone créé par la convection. On fait alors l'hypothèse de profils de retrodiffusion et d'extinction constants avec l'altitude dans les premières mètres après l'émission laser ( $\bar{\beta}(\lambda)$ ,  $\bar{\alpha}_{ext}(\lambda)$ ). Pour  $z$  petit, on peut alors écrire :

$$\ln(S_2(\lambda, z)) = \ln(F(\lambda, z)) + \left[ \ln(C(\lambda) \cdot \bar{\beta}(\lambda)) - \frac{2}{\mu} \cdot \bar{\alpha}_{ext}(\lambda) \cdot (z - z^*) \right] \quad (3.36)$$

Le facteur de recouvrement peut ainsi être obtenu par différence du signal corrigé  $S_2$  avec la droite (terme entre crochets dans l'Eq. 3.36) de pente  $\bar{\alpha}_{ext}(\lambda)$ . Cette droite est tracée par extrapolation du profil lidar en dessous de la zone de recouvrement total (Fig. 3.26).

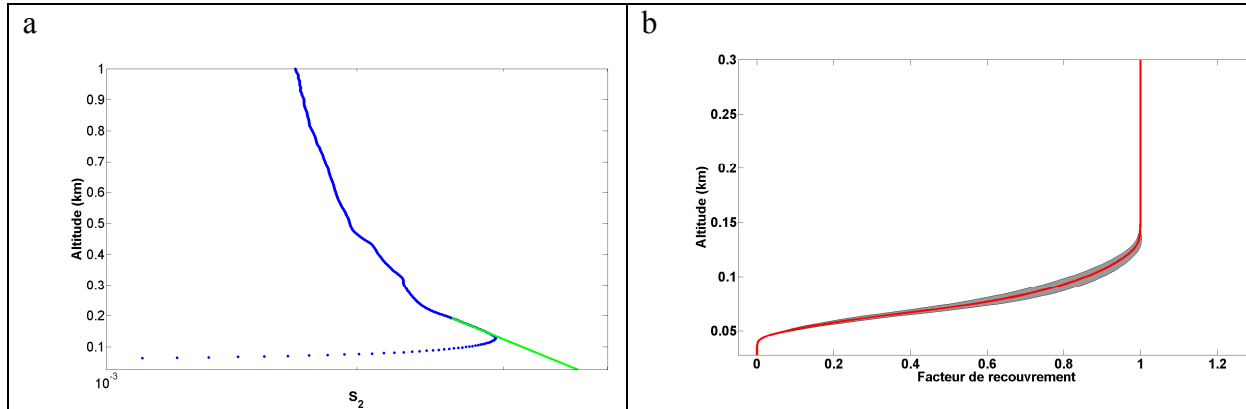


Fig. 3.26 : Prolongement d'un signal moyen  $S_2$  dans les basses couches de la CLA (a) pour la détermination du facteur de recouvrement (b), à partir du lidar LAUVA le 26 mai 2005 à Paris. En (b), la dispersion des facteurs de recouvrement représente l'écart-type sur l'ensemble des profils traités sur la journée du 26 mai.

#### 3.3.6 Diffusion Rayleigh

On peut écrire de manière équivalente à l'Eq. 3.34 :



$$S_2(\lambda, z) = C(\lambda) \cdot F(\lambda, z) \cdot (\beta_p(\lambda, z) + \beta_m(\lambda, z)) \cdot \exp\left(-\frac{2}{\mu} \cdot \int_{z^*}^z (\alpha_{ext,p}(\lambda, z') + \alpha_{ext,m}(\lambda, z')) \cdot dz'\right) \quad (3.37)$$

où les indices  $p$  et  $m$  désignent respectivement les contributions des particules (par la théorie de Mie, Sect. 2.3.2) et des molécules (par la théorie de Rayleigh, Sect. 2.3.4) aux profils de rétrodiffusion et d'extinction. La concentration en aérosol diminuant avec l'altitude jusqu'à atteindre une valeur quasi-nulle, il est possible de considérer qu'à partir d'une certaine hauteur le signal lidar est uniquement conditionné par la diffusion de Rayleigh :

$$S_{Ray}(\lambda, z) = \beta_m(\lambda, z) \cdot \exp\left(-\frac{2}{\mu} \cdot \int_{z^*}^z \alpha_{ext,m}(\lambda, z') \cdot dz'\right) \quad (3.38)$$

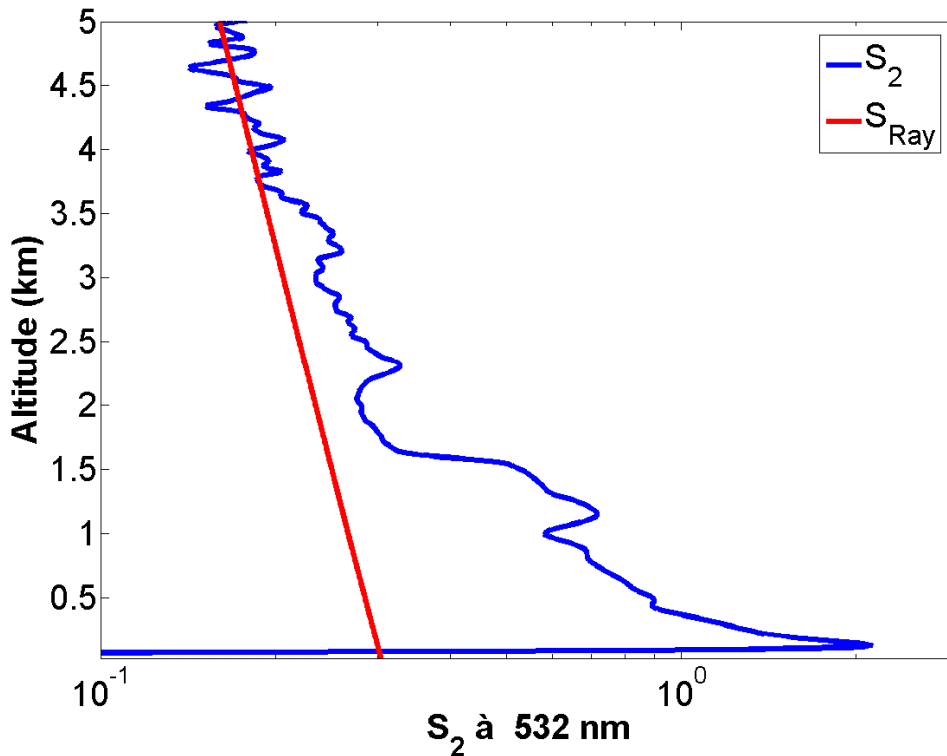


Fig. 3.27 : Exemple de profil lidar corrigé mesuré par le LESAA le 18 mai 2005 à Paris à 04 :00 UTC (Universal Coordinated Time) et profil de signal Rayleigh.

La Fig. 3.27 présente une comparaison entre un profil lidar (fonction de la distribution verticale des diffuseurs que sont les aérosols, les nuages et les molécules) et le profil que l'on obtiendrait si l'atmosphère n'était composée que de molécules. La différence entre ces deux signaux est produite par la présence des particules et permet de caractériser grossièrement les scènes atmosphériques. Comme on le verra au Chapitre 4, il est possible d'identifier sur ce profil la couche d'inversion nocturne entre 0 et 400 m, la couche des polluants résiduels piégés en altitude durant la nuit entre 0.4 et 1.5 km, et des couches de particules extrêmement fines jusqu'à 3.5 km. Au-dessus de ces altitudes, la rétrodiffusion est uniquement due aux molécules. La connaissance du signal  $S_2$  ne permet cependant pas à elle seule d'accéder à une information quantitative sur la structure verticale des couches d'aérosols. Cette analyse se fait par inversion du signal émis par le laser en terme de profil vertical de coefficient de rétrodiffusion ou d'extinction. La restitution de ces paramètres atmosphériques est décrite dans la section qui suit.



### 3.3.7 Analyse du signal lidar

#### 3.3.7.1 Information directe

La première étape préliminaire à la restitution des paramètres optiques est la normalisation du signal lidar (supposé corrigé du facteur de recouvrement). Il est en effet possible de quantifier la constante instrumentale  $C(\lambda)$  qui dépend de tous les paramètres optoélectroniques du lidar en se plaçant dans une zone de l'atmosphère où l'on peut considérer tous les autres paramètres connus. La connaissance d'un domaine contrôlé uniquement par la diffusion Rayleigh est un exemple typique de normalisation. Lorsque cette situation n'est pas appropriée, il est nécessaire de passer par la connaissance des mesures d'autres instruments décrivant quantitativement une zone de l'espace (Raut et al., 2008b). Dans le cas fréquent d'existence d'une zone Rayleigh, on peut définir le coefficient de rétrodiffusion apparent corrigé de la transmission moléculaire par :

$$\beta_{app}(\lambda, z) = \frac{S_2(\lambda, z)}{S_2(\lambda, z_{ref})} \cdot \frac{\exp\left(2 \cdot \int_0^z \alpha_{ext,m}(\lambda, z') \cdot dz'\right)}{\exp\left(2 \cdot \int_0^{z_{ref}} \alpha_{ext,m}(\lambda, z') \cdot dz'\right)} \cdot \beta_m(\lambda, z_{ref}) \quad (3.39)$$

qui vaut, en utilisant l'Eq. 3.34 :

$$\beta_{app}(\lambda, z) = \beta(\lambda, z) \cdot \exp\left(-2 \cdot \int_{z_{ref}}^z \alpha_{ext,p}(\lambda, z') \cdot dz'\right) \quad (3.40)$$

où  $z_{ref}$  est l'altitude du profil  $S_2$  pour laquelle la contribution des particules au signal est négligeable. Le coefficient  $\beta_{app}$  dépend de cette altitude de référence. Il s'écarte de plus du profil de rétrodiffusion  $\beta$  par effet de la transmission aller-retour due aux aérosols seulement. En réalité, on préfère définir une zone de diffusion moléculaire, c'est-à-dire que  $z_{ref}$  est remplacée par un intervalle de  $q$  altitudes  $[z_{ref}^1, z_{ref}^q]$ , ce qui donne avec les moyennes géométriques :

$$\beta_m(\lambda, z_{ref}) = \left( \prod_{i=1}^q \beta_m(\lambda, z_{ref}^i) \right)^{\frac{1}{q}} = \exp\left(\frac{1}{q} \cdot \sum_{i=1}^q \ln(\beta_m(\lambda, z_{ref}^i))\right) \quad (3.41)$$

$$S_2(\lambda, z_{ref}) = \left( \prod_{i=1}^q S_2(\lambda, z_{ref}^i) \right)^{\frac{1}{q}} = \exp\left(\frac{1}{q} \cdot \sum_{i=1}^q \ln(S_2(\lambda, z_{ref}^i))\right) \quad (3.42)$$

La Fig. 3.28 montre deux exemples de signaux lidar exprimés en coefficients de rétrodiffusion apparents. La zone de référence a été prise pour le minimum de signal entre 3.4 et 4 km le 18 mai et entre 4 et 6 km le 27 mai. Les profils bruts corrigés du fond de ciel et de la portée sont difficiles à exploiter directement, notamment en raison de fluctuations dans l'énergie émise par le laser et donc la constante  $C(\lambda)$  qui gêne la lisibilité de la figure. Sur les  $\beta_{app}$  en revanche, les structures des couches d'aérosols apparaissent nettement. Ces couches présentent une bonne cohérence temporelle car on s'affranchit alors des perturbations liées à la constante système. Celle-ci peut être déterminée sous la forme :

$$C(\lambda) = \frac{S_2(\lambda, z_{ref})}{S_{Ray}(\lambda, z_{ref})} \cdot \exp\left(\frac{2}{\mu} \cdot \tau_p(\lambda, z^*, z_{ref})\right) \quad (3.43)$$

### 3. L'approche multi-instrumentée

lorsque l'épaisseur optique des particules jusqu'à la zone de référence peut être déterminée. Nous verrons dans la suite que cela est possible après inversion de l'équation lidar ou par la mesure d'un photomètre solaire. Dans le cas de la Fig. 3.28, les variations de  $C(\lambda)$  sont très fortement corrélées aux fluctuations observées dans le signal  $S_2$ .

La Fig. 3.29 illustre l'influence du choix de l'altitude (ou zone) de référence. Dans le cas de tirs lidar à partir du sol, comme c'est le cas ici, pour toute altitude inférieure à la hauteur de référence, le coefficient de rétrodiffusion apparent est plus élevé que le coefficient de rétrodiffusion réel de l'aérosol. Plus on s'éloigne de la zone de référence, et plus l'écart à la valeur réelle est important car l'effet de l'atténuation optique est accrue (terme exponentiel l'Eq. 3.40 plus fort). Une zone de référence mal choisie (cas c de la Fig. 3.29) complexifie la lisibilité des profils qui sont ici caractéristiques d'une couche limite convective qui se développe doucement, et peut même rendre impossible son exploitation.

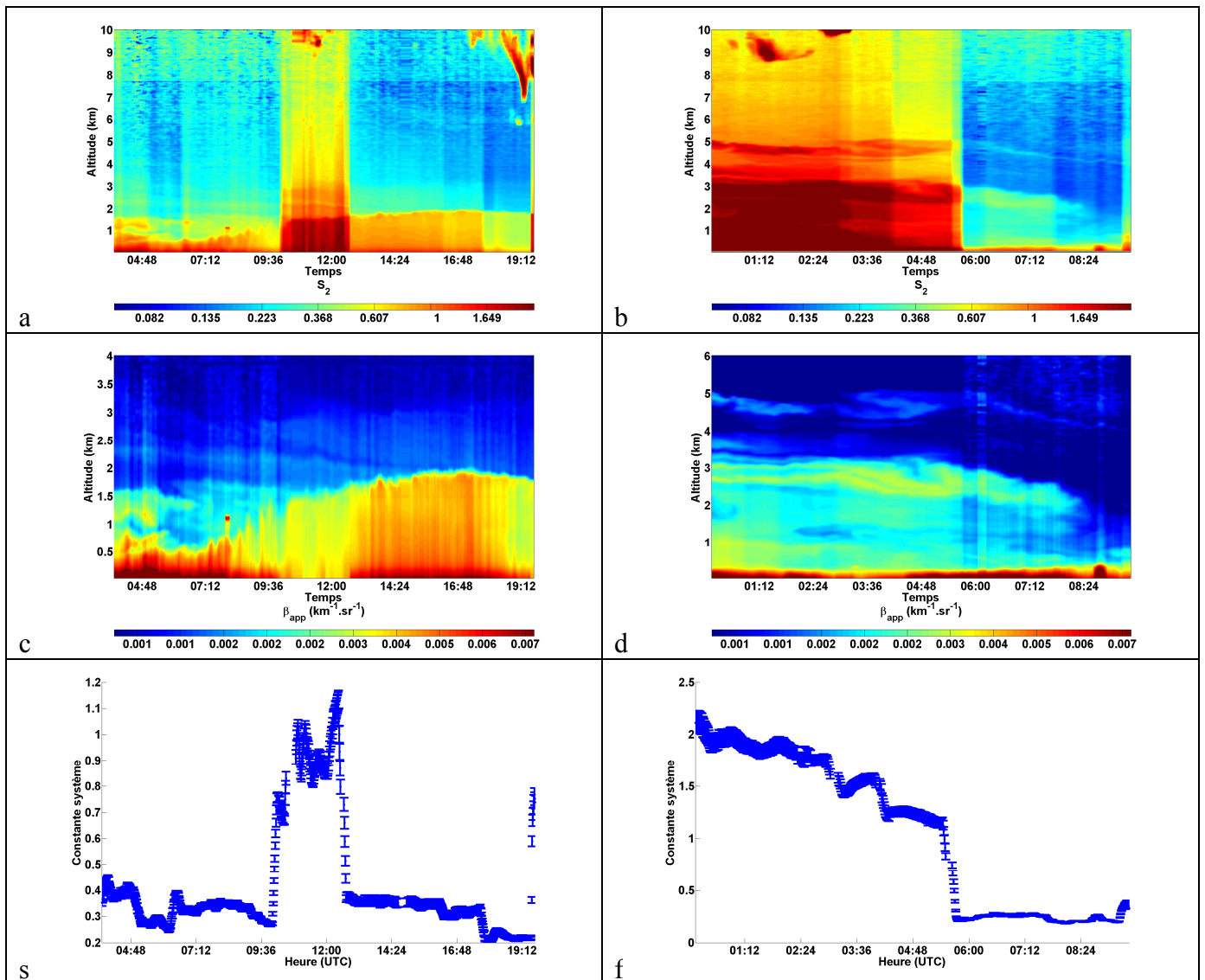


Fig. 3.28 : Profils lidar  $S_2$  (a,b) obtenus les 18 et 27 mai 2005 respectivement à Paris par le lidar LESAA à 532 nm. Les profils de rétrodiffusion apparent et les valeurs de la constante instrumentale associés sont donnés en (c,d) et (e,f) respectivement.

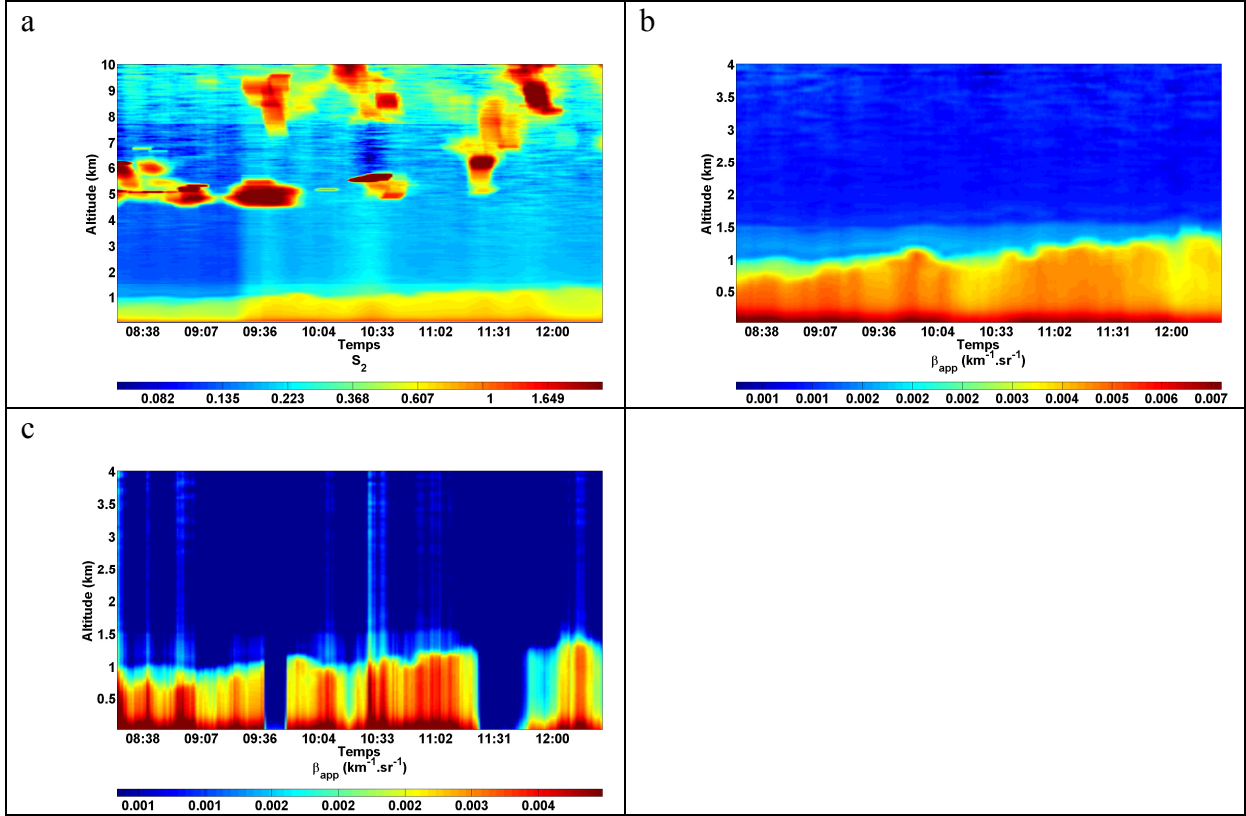


Fig. 3.29 : Profils lidar obtenus dans la matinée du 25 mai 2005 à Paris par le lidar LESAA à 532 nm. (a) signal corrigé  $S_2$ , (b) : coefficient de rétrodiffusion apparent avec  $z_{ref}$  choisi pour le minimum de signal entre 1.5 et 3 km, et (c) : coefficient de rétrodiffusion apparent avec  $z_{ref}$  choisi pour le minimum de signal entre 7 et 8 km.

On définit également un rapport de diffusion apparent  $R_{app}$  qui fait écho au rapport de diffusion  $R$ . Ces deux rapports décrivent les contributions des structures verticales de particules par rapport à celles des molécules. Ils diffèrent entre eux de la transmission des particules et sont donnés par :

$$R(\lambda, z) = \frac{\beta(\lambda, z)}{\beta_m(\lambda, z)} \quad (3.44)$$

$$R_{app}(\lambda, z) = \frac{\beta_{app}(\lambda, z)}{\beta_m(\lambda, z)} = R(\lambda, z) \cdot \exp\left(-2 \cdot \int_{z_{ref}}^z \alpha_{ext,p}(\lambda, z') \cdot dz'\right) \quad (3.45)$$

Ces coefficients apparents fournissent par conséquent une première information sur les couches d'aérosols et de nuages présentes. Toutefois, la précision qu'ils apportent est insuffisante pour que ces résultats soient utilisés quantitativement pour des calculs de propriétés optiques (indices de réfraction, albédo de simple diffusion) et dans des modèles de transfert radiatif. Il est alors nécessaire d'effectuer l'inversion de l'équation lidar donnée par la relation 3.37.

#### 3.3.7.2 Inversion du signal

Il existe différentes techniques pour inverser l'équation lidar, bien que la plupart d'entre elles fassent des hypothèses qui dépendent fortement des propriétés du lidar utilisé ainsi que des

conditions d'utilisation. La méthodologie la plus utilisée est celle développée par Fernald et al. (1972, 1984) et Klett (1981, 1985).

En partant de l'Eq. 3.34 corrigée du facteur de recouvrement, on a :

$$\frac{\partial[\ln(S_2)]}{\partial z}(\lambda, z) = \left( \frac{1}{\beta} \cdot \frac{\partial \beta}{\partial z} \right)(\lambda, z) - \frac{2}{\mu \cdot BER(\lambda, z)} \cdot \beta(\lambda, z) - \frac{2}{\mu} \alpha_{ext,m}(\lambda, z) \cdot \left[ 1 - \frac{\kappa_m}{BER(\lambda, z)} \right] \quad (3.46)$$

où (Fernald, 1984):

$$\kappa_m(\lambda, z) = \frac{\beta_m(\lambda, z)}{\alpha_{ext,m}(\lambda, z)} = \frac{3}{8\pi} \quad (3.47)$$

et :

$$BER(\lambda, z) = \frac{\beta_p(\lambda, z)}{\alpha_{ext,p}(\lambda, z)} \quad (3.48)$$

qui désigne le « Backscatter-to-extinction ratio » (inverse du rapport lidar) ne dépend pas de la concentration, mais de la microphysique des diffuseurs (granulométrie, indice de réfraction et forme).

On aboutit alors à une équation différentielle de Bernoulli d'ordre 1 :

$$\frac{\partial S_3}{\partial z}(\lambda, z) = \left( \frac{1}{\beta} \cdot \frac{\partial \beta}{\partial z} \right)(\lambda, z) - \frac{2}{\mu \cdot BER(\lambda, z)} \cdot \beta(\lambda, z) \quad (3.49)$$

en posant :

$$\frac{\partial S_3}{\partial z}(\lambda, z) = \frac{\partial[\ln(S_2)]}{\partial z}(\lambda, z) + \frac{2}{\mu} \alpha_{ext,m}(\lambda, z) \cdot \left[ 1 - \frac{\kappa_m}{BER(\lambda, z)} \right] \quad (3.50)$$

Klett et al. (1981, 1985) ont donné la solution de l'équation de Bernoulli 3.49 :

$$\beta(\lambda, z) = \frac{S_2(\lambda, z) \cdot Q(\lambda, z)}{\frac{S_2(\lambda, z_{ref})}{\beta(\lambda, z_{ref})} + \frac{2}{\mu} \cdot \int_z^{z_{ref}} \frac{S_2(\lambda, z') \cdot Q(\lambda, z')}{BER(\lambda, z')} dz'} \quad (3.51)$$

où

$$Q(\lambda, z) = \exp \left[ \frac{2}{\mu} \cdot \int_z^{z_{ref}} \left( \left( \frac{\kappa_m}{BER(\lambda, z')} - 1 \right) \cdot \alpha_{ext,m}(\lambda, z') \cdot dz' \right) \right] \quad (3.52)$$

Le terme  $\beta(\lambda, z_{ref})$  étant supposé connu (notamment si une zone Rayleigh est identifiable), la détermination du profil vertical de  $\beta$  nécessite la connaissance du  $BER$ . L'Eq. 3.51 avec deux inconnues est donc sous déterminée. La seule mesure d'un lidar à rétrodiffusion Mie ne suffit pas pour résoudre cette équation. La détermination des profils de rétrodiffusion et d'extinction de l'aérosol dans la colonne d'air passe alors par la connaissance du rapport lidar.

Dans le cas où la composition chimique et les propriétés microphysiques de l'aérosol ne varient pas verticalement, on peut envisager un  $BER$  constant dans la colonne atmosphérique (Fernald, 1972 ; Klett, 1981). Seule la concentration totale de particules est supposée variable avec l'altitude. En situation de ciel clair, l'approche la plus courante est de contraindre l'inversion lidar avec les observations d'un photomètre solaire. Il s'agit d'une approche itérative sur les valeurs de  $BER$ . L'épaisseur optique calculée à partir du profil constant de rapport lidar par inversion de l'équation lidar est comparée à celle déduite du photomètre

(Chazette, 2003). La procédure s'arrête lorsque l'écart entre ces deux épaisseurs optiques est inférieur à  $10^{-4}$ .

La Fig. 3.30 présente deux exemples de profils lidar inversés par cette technique. Les profils inversés font apparaître des caractéristiques des particules qui n'étaient pas détectables sur les profils de rapport de diffusion apparent. En effet,  $R_{app}$  est toujours strictement supérieur à 1 en raison de l'atténuation optique des aérosols non corrigée et  $R_{app}$  s'écarte de la valeur vraie  $R$  lorsque l'on s'éloigne de la zone de référence. Les plus basses couches en particulier ont une signature optique surestimée. Le profil d'extinction du 25 mai fait ainsi apparaître des valeurs plus élevées au sommet de la couche limite, typiques d'une humidité relative plus élevée dans cette zone. De même, la couche de poussières minérales d'origine saharienne observée le 27 mai est transportée en altitude entre 2.5 et 3.5 km, comme le confirment les rétrotrajectoires de masses d'air obtenues à l'aide du modèle numérique HYSPLIT (« HYbrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory ») avec les champs météorologiques du NCEP (« National Center for Environmental Prediction ») de la NOAA). Cela est contraire à ce que laissait supposer l'analyse du profil de diffusion apparent qui ne distingue pas clairement cette couche en altitude des couches optiquement peu denses des polluants résiduels piégés durant l'érosion de la couche limite la veille au soir.

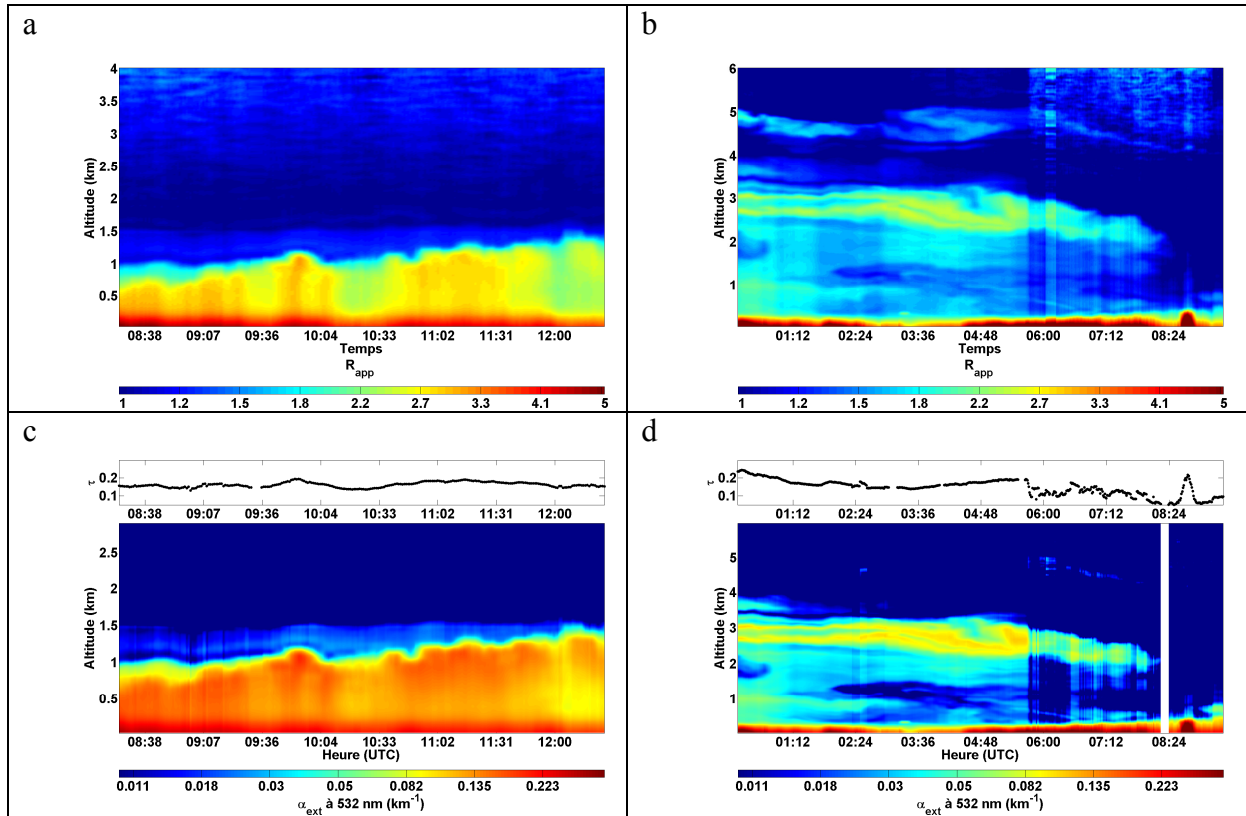


Fig. 3.30 : Comparaison entre des signaux lidar exprimés en rapport de diffusion apparent (a,b) et leurs homologues exprimés en coefficient d'extinction de l'aérosol (c,d) après inversion par la contrainte de l'épaisseur optique intégrée d'un photomètre. Les profils lidar ont été obtenus les 25 (a,c) et 27 (b,d) mai 2005 à Paris par le lidar LESAA fonctionnant à 532 nm. La zone de référence a été choisie au minimum de signal entre 1.5 et 3 km pour le 25 mai et entre 4 et 6 km pour le 27 mai. Les épaisseurs optiques calculées à 532 nm sont données en noir (c,d) en fonction de l'heure TU.

Lorsque l'on ne peut plus faire l'hypothèse d'un rapport lidar constant avec l'altitude, on peut chercher à observer chaque point de la ligne de visée par deux mesures lidar indépendantes. Ceci est possible si l'on utilise un lidar multi-angulaire dans le cas d'une atmosphère plan-parallèle et en supposant que les variations atmosphériques sont négligeables entre les instants de mesure à deux angles de visée différents (Sicard et al., 2002). Une autre technique consiste à utiliser deux lidars (de signaux  $S_2^1$  et  $S_2^2$ ) dont les directions de visée sont en opposition (méthode à deux flux, dite « two-stream » ou « bipath method »). Cette approche est bien décrite par Kunz (1987) et Hughes and Paulson (1988) et permet d'écrire :

$$\alpha_{ext}(\lambda, z) = -\frac{1}{4} \cdot \frac{\partial \left( \ln \left( \frac{S_2^1(\lambda, z)}{S_2^2(\lambda, z)} \right) \right)}{\partial z} \quad (3.53)$$

Dans la cas où le coefficient d'extinction et de rétrodiffusion peuvent être considérés constants sur la ligne de visée  $s$ , par exemple en tir horizontal, la relation précédente se réduit à :

$$\alpha_{ext}(\lambda, s) = -\frac{1}{2} \cdot \frac{\partial (\ln(S(\lambda, s)))}{\partial s} \quad (3.54)$$

La mesure d'un seul lidar est alors requise. Ce type de mesure est intéressant pour cartographier la répartition spatiale des particules car il permet de détecter des panaches, que ce soit dans le cas de cheminées d'usines, pour des feux de biomasse ou des aérosols biogéniques et terrigènes (Fig. 3.31a). Il permet de plus de déduire l'albédo de simple diffusion de ces aérosols si une mesure néphélométrique est parallèlement réalisée. Un exemple d'intercomparaison entre observations lidar et néphélométrique est donné en Fig. 3.31b.

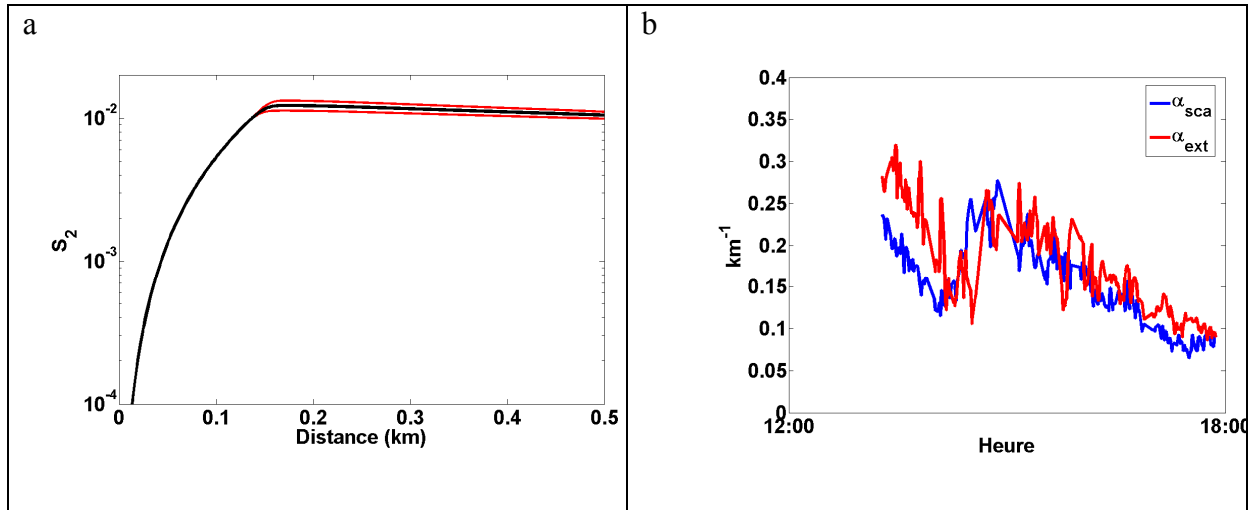


Fig. 3.31 : Résultats de mesures en visée horizontale effectuées à l'Ecole Polytechnique le 14 mars 2007 entre 12 :00 et 18 :00 avec une humidité relative de 40% seulement. (a) : Profils lidar moyen (noir) et écart-type (rouge), (b) : comparaison entre le coefficient d'extinction de l'aérosol inversé de la mesure lidar et le coefficient de diffusion de l'aérosol obtenu par le néphélomètre. L'albédo de simple diffusion qui en découle est de 0.88.

Cette approche simple en tirs horizontaux peut aussi être mise en place lors de mesures aéroportées dans un petit porteur comme un ULM pour restituer à chaque altitude de vol le coefficient d'extinction obtenu par l'Eq. 3.54 (Chazette et al., 2007a). Nous avons appliqué cette méthode lors de la campagne de validation Calipso en juin-juillet 2007. L'approche

expérimentale consistait à comparer les mesures réalisées par plusieurs lidars se trouvant sous la trace du satellite au moment où celui-ci passait: le LESAA placé au sol et le LAUVA embarqué sur un ULM. Les résultats des profils obtenus le 30 juin au-dessus de l'aérodrome de Narbonne sont donnés sur la Fig. 3.32. Ils montrent une bonne restitution des structures d'aérosols par le lidar embarqué sur ULM en visée horizontale en comparaison des profils verticaux obtenus en visée nadir ou zénithale. La CLA est limitée au premier kilomètre et une couche peu dense de particules issues de feux de biomasse est identifiée entre 1 et 3 km d'altitude (Chazette et al., 2008). Notons que les comparaisons d'épaisseurs optiques ne sont pas évidentes car les longueurs d'onde sont différentes (0.34, 0.23 et 0.07 à 355, 532 et 880 nm, respectivement). Les coefficients d'Angström sont toutefois de  $\sim 1 \pm 0.2$  et  $\sim 1.6$  entre 355 et 532 nm, et entre 355 et 880 nm, respectivement, et par conséquent en accord avec les valeurs obtenues par les mesures photométriques.

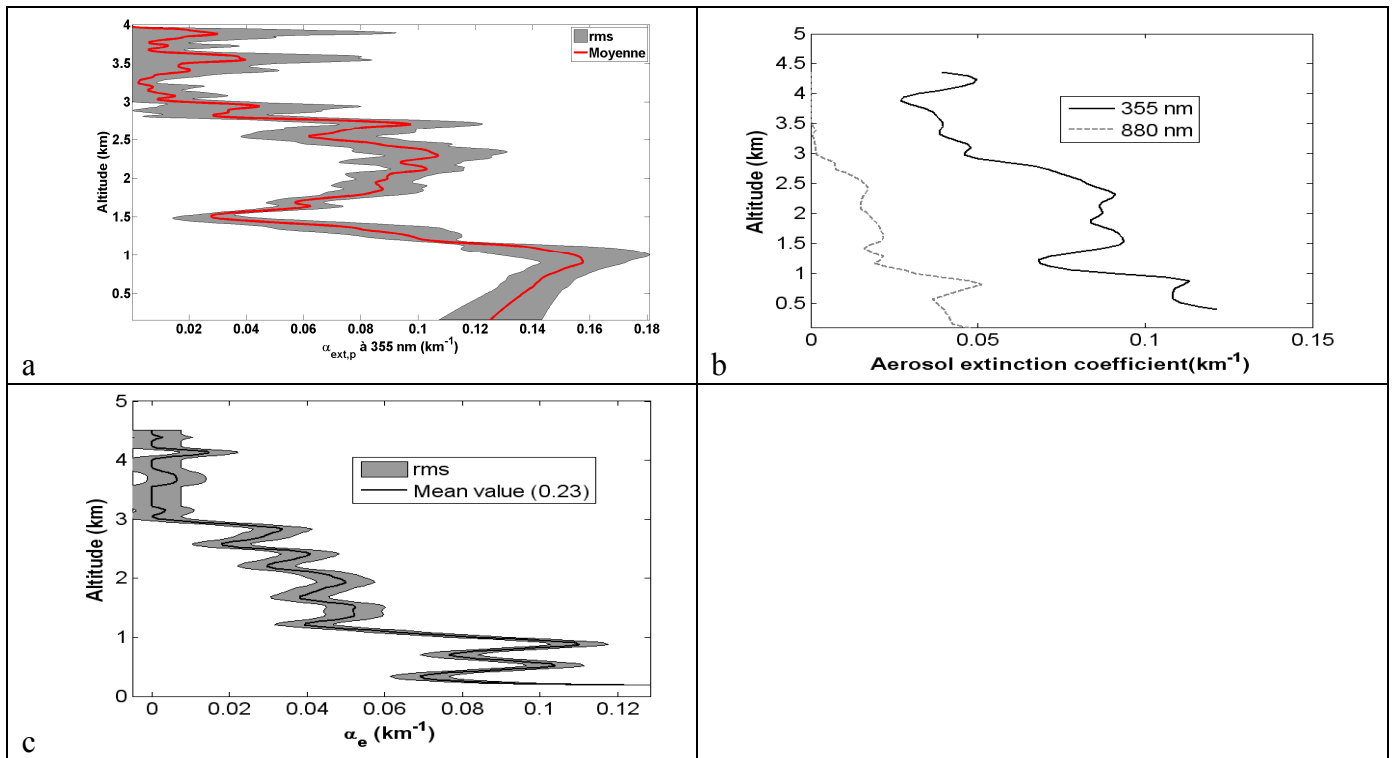


Fig. 3.32 : Coefficients d'extinction de l'aérosol restitués à 355 nm par le LESAA au sol en visée zénithale avec un BER de  $0.017 \text{ sr}^{-1}$  (a), à 355 nm par le LAUVA embarqué en ULM en visée horizontale (b), à 880 nm par le PdRam embarqué dans l'ULM (b) et à 532 nm par le lidar CALIOP en visée nadir avec un BER de  $0.022 \text{ sr}^{-1}$  (c). Pour les inversions verticales, l'algorithme de Klett a été utilisé avec une altitude de référence entre 3 et 5 km et la contrainte intégrée d'un photomètre solaire. Les profils CALIOP ont dû être moyennés sur 135 tirs en raison d'un rapport signal à bruit (SNR) faible (faible épaisseur optique).

Deux autres méthodes permettent de résoudre l'équation lidar. En utilisant plusieurs longueurs d'onde, on s'affranchit du BER, mais il est alors nécessaire de connaître les coefficients d'Angström qui sont en général différents pour l'extinction et la rétrodiffusion, ce qui ajoute des inconnues supplémentaires au problème. La procédure d'inversion est alors plus complexe (Müller et al., 1999). On peut enfin envisager de tirer parti du phénomène de diffusion Raman propre aux molécules qui, en plus de rétrodiffuser la lumière à la longueur d'onde incidente par diffusion élastique, consomment également une partie de l'énergie incidente dans une transition moléculaire, ce qui permet la rétrodiffusion à d'autres longueurs d'onde spécifiques (Ansmann et al., 1990). La détection Raman azote, basée sur la transition



vibrationnelle de la molécule avec un nombre d'onde associé de  $2330.7 \text{ cm}^{-1}$ , est la plus courante. Pour un laser émettant à  $\lambda$ , la longueur d'onde correspondant à la raie Raman sera donc :

$$\lambda_{Ram} = \left( \frac{1}{\lambda} - 2330.7 \right)^{-1} \quad (3.55)$$

qui vaut 387 nm pour un laser Nd-YAG émettant dans l'UV et 607 nm dans le visible. Quoique la section efficace de rétrodiffusion Raman soit beaucoup plus faible que celle en diffusion élastique (facteur 3), cette approche permet de restituer de nuit les profils de  $BER$ ,  $\alpha_{ext}$  et  $\beta$ .

### 3.3.8 Sources de bruit

Il existe plusieurs sources d'incertitude dans la mesure lidar. La connaissance des incertitudes et des sources de bruits permet d'optimiser les spécifications instrumentales pour répondre à des objectifs scientifiques définis. Nous recensons ici les différentes sources de bruit associées au mode analogique et les variations du  $SNR$  qui en résultent. L'analyse de leur influence sur le signal lidar permet de faire la distinction entre les signatures réelles des phénomènes atmosphériques et les contributions instrumentales. Ces bruits se caractérisent par des fluctuations du signal en raison du comportement statistique de la détection et des incertitudes liées à l'acquisition.

Le bruit de grenaille, également nommé bruit de détection, bruit quantique, bruit de Shottky ou « shot noise », résulte de la nature stochastique du processus de génération des photoélectrons au niveau du détecteur (discontinuités du débit des porteurs de charge dues à des effets quantiques) et obéit à la loi de Poisson. Ce bruit touche aussi bien le signal lidar utile que le signal radiométrique ou « fond de ciel ». Il s'agit de l'incertitude dominante dans les fluctuations du signal. Ce bruit peut être relié aux valeurs moyennes du signal (donné par l'Eq. 3.33) de la manière suivante :

$$\sigma_G = G_A \cdot \left( \frac{2 \cdot e \cdot G_i \cdot \zeta_F \cdot \Delta f}{p} \cdot \frac{S_0}{G_A} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (3.56)$$

en tenant compte de l'amplification de gain  $G_A$ .  $G_i$  et  $e$  sont définis à l'Eq. 3.29.  $p$  représente le nombre de tirs laser,  $\zeta_F$  un facteur correctif tenant compte de la fluctuation du gain ( $\sim 1.5$  pour un photomultiplicateur) et  $\Delta f$  la bande passante du détecteur. D'après le théorème de Shannon, l'échantillonnage est effectué à une fréquence deux fois supérieure à  $\Delta f$ , c'est-à-dire, en vertu de l'Eq. 3.15:

$$\Delta f = \frac{\mu \cdot c}{4 \cdot \Delta z} \quad (3.57)$$

avec  $\Delta z$  la résolution verticale des mesures. D'où :

$$\sigma_G = G_A \cdot \left( \frac{e \cdot G_i \cdot \zeta_F \cdot \mu \cdot c}{2 \cdot \Delta z \cdot p} \cdot \frac{S_0}{G_A} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (3.58)$$

Le bruit d'obscurité résulte du fait que les photodétecteurs, même en absence de tout flux lumineux incident, délivrent un courant minimum qui fluctue autour de sa valeur moyenne. Ce courant appelé courant d'obscurité est fonction de la température. Il caractérise la présence de charges libres dans le détecteur arrachées à la bande de valence par agitation thermique. Il



s'exprime en fonction de la puissance équivalente de bruit du photodétecteur (NEP exprimé en  $\text{W.Hz}^{-1/2}$ ). Pour  $p$  tirs et pour une amplification de gain  $G_A$ , le bruit d'obscurité vaut :

$$\sigma_o = G_A \cdot NEP \cdot G_i \cdot \left( \frac{\eta \cdot e \cdot \lambda}{h \cdot c} \right) \cdot \left( \frac{\mu \cdot c}{4 \cdot \Delta z \cdot p} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (3.59)$$

Le bruit de Nyquist-Johnson ou bruit thermique ou encore bruit de résistance est dû aux fluctuations du signal électrique produit par l'agitation thermique des porteurs de charges dans le détecteur. Ce bruit est à moyenne nulle, son écart-type augmente avec la température. Il caractérise la force électromotrice du bruit dans le circuit de toute résistance électrique. Pour  $p$  tirs et après une amplification de gain  $G_A$ , le bruit thermique vaut :

$$\sigma_{NJ} = G_A \cdot \left( \frac{4 \cdot k_B \cdot T \cdot \Delta f}{R} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (3.60)$$

avec  $R$  la résistance de charge,  $T$  la température thermodynamique du détecteur et  $k_B$  la constante de Boltzmann ( $1.38 \times 10^{-23} \text{ J.K}^{-1}$ ).

$$\sigma_{NJ} = G_A \cdot \left( \frac{k_B \cdot T \cdot \mu \cdot c}{R \cdot \Delta z \cdot p} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (3.61)$$

Le bruit d'amplification est lié aux fluctuations du gain de l'électronique utilisée dans les préamplificateurs placés en série avec le détecteur. En notant  $NEP_A$  la puissance équivalente de bruit de l'amplificateur (qui tient compte du gain d'amplification  $G_A$ ), et en considérant  $p$  tirs laser, le bruit d'amplification s'écrit :

$$\sigma_A = \frac{NEP_A}{R} \cdot \left( \frac{\mu \cdot c}{4 \cdot p \cdot \Delta z} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (3.62)$$

Il faut y ajouter finalement les incertitudes en aval des étages d'amplification. En particulier, le bruit de quantification est l'incertitude engendrée par la discrétisation du signal analogique lors de sa numérisation sur  $n_b$  bits, ce qui permet uniquement  $2^{n_b}$  valeurs de codage. Si  $U_{max}$  est l'amplitude maximale de numérisation, la valeur efficace du bruit de quantification est exprimée sous la forme :

$$\sigma_Q = \frac{1}{2\sqrt{3}} \cdot \frac{U_{max}}{2^{n_b}} \quad (3.63)$$

L'ensemble des bruits provenant de sources indépendantes, la variance globale de la détection en mode analogique s'exprime comme la somme des variances des différentes sources de bruit. Le  $SNR$  devient par conséquent à la sortie du préamplificateur :

$$SNR = \frac{\frac{S_0 - S_{fc}}{G_A}}{\sqrt{\frac{e \cdot G_i \cdot \zeta_F \cdot \mu \cdot c \cdot S_0}{2 \cdot G_A} + NEP^2 \cdot G_i^2 \cdot \left( \frac{\eta \cdot e \cdot \lambda}{h} \right)^2 \cdot \frac{\mu}{4 \cdot c} + \frac{k_B \cdot T \cdot \mu \cdot c}{R} + \frac{NEP_A^2 \cdot \mu \cdot c}{4 \cdot R^2}}} \cdot \sqrt{p \cdot \Delta z} \quad (3.64)$$

Après numérisation, le  $SNR$  est modifié en tenant compte de  $\sigma_Q$  défini par l'Eq. 3.63.

### 3.3.9 Détection des structures d'aérosols par la mesure lidar

#### 3.3.9.1 Structure verticale de la troposphère

Le principal avantage de la technologie lidar est de fournir une information résolue en altitude de la colonne atmosphérique, en particulier sur les structures de particules qui composent la CLA et la troposphère libre. La CLA est la partie de la troposphère directement influencée par la présence de la surface de la Terre où les effets dynamiques et thermiques du sol se font fortement ressentir. Elle est un réservoir important d'aérosols de l'atmosphère. Au-dessus de cette couche, l'air de la troposphère n'est plus en contact direct avec la surface : on parle de troposphère libre. Le contenu en particules dans cette fraction d'atmosphère est plus variable et souvent sporadique. Ces particules proviennent en effet de la CLA, sont injectées dans la troposphère libre par des processus à l'échelle synoptique ( $\sim 10^2$ - $10^3$  km) et sont restituées dans la CLA lorsque les couches qui les contiennent sont érodées par des écoulements convectifs provenant de la CLA ou lorsque des échanges CLA – troposphère libre sont créés en présence de nuages ou de cisaillement de vent.

L'étude de la hauteur de la CLA est une contrainte essentielle pour mieux appréhender les concentrations des particules au niveau de la surface terrestre ou océanique. Elle est de plus sujette à un cycle diurne. Sous l'action du chauffage de la surface, des mouvements convectifs, appelés thermiques, se développent et la hauteur de la couche augmente provoquant une dilution des composés gazeux et des aérosols. A la couche de surface instable (0-50 m) se superpose alors une région où les masses d'air peuvent se déplacer librement (profil de température potentielle constant), entraînant le mélange vertical. Après la disparition des thermiques en fin de journée, la couche nocturne est constituée et piège, à proximité de la surface, les aérosols initialement contenus dans la couche mélangée. L'inversion de température rend cette couche stable et peu turbulente (vent de surface). L'échange vertical est alors très limité. Une partie des aérosols reste cependant piégée dans la couche résiduelle. La zone d'entraînement peu épaisse (~quelques dizaines à quelques centaines de mètres) constitue une zone d'échange entre CLA, couches résiduelle et troposphère libre. Ces échanges sont toutefois limités car l'inversion de température à cette altitude constitue une barrière pour le transport des masses d'air entre la CLA et la troposphère libre.

#### 3.3.9.2 Détection de la hauteur de la CLA

On peut typiquement distinguer les aérosols de la CLA et de la troposphère libre par des critères simples : structure homogène dans la CLA liée au mélange convectif et particules en couches stables détachées de la CLA dans la troposphère libre. Cette différence de distribution des aérosols entre les deux régions est à la base d'une méthode de détection de la hauteur de la CLA et des couches superposées ou résiduelles. Une telle méthode est notamment appliquée dans les cas où la discrimination des différentes couches n'est pas évidente, par exemple en présence de couches résiduelles. La limite entre la CLA et la troposphère libre est ainsi restituée à l'aide d'un algorithme de détection des hétérogénéités verticales en concentration de particules à partir des profils lidar. Cette approche permet de suivre l'évolution temporelle de la hauteur de la couche limite. Pour cela, on détecte sur chaque profil lidar, le minimum du gradient vertical (Dupont et al., 2001 ; Flamant et al., 1997). Une amélioration de ces techniques, bien détaillée par Cuesta (2006), permet également d'estimer les extrêmes de la zone de transition par les points minimum et maximum locaux voisins de l'altitude où le rayon de courbure s'annule. Cette approche a été

utilisée dans ce travail en calculant les profils des dérivées du coefficient d'extinction. On effectue dans ce cas une dérivation analytique du polynôme de deuxième degré obtenu par ajustement de moindres carrés du coefficient d'extinction. Les calculs sont réalisés dans une fenêtre glissante dont la taille est proche de l'épaisseur de la zone de transition analysée.

La Fig. 3.33 présente un exemple de détection de structures par cette méthode obtenu à Paris le 18 mai 2005 vers 04 :00 UTC. L'approche a été appliquée à la fois pour la détection du sommet de la couche limite avec sa zone de transition et pour la détection du sommet de la couche résiduelle de polluants piégés la nuit. La précision sur l'altitude des couches est de l'ordre de 30 m. La couche d'inversion nocturne atteint 300 m. Au-dessus de cette dernière, la couche résiduelle comporte plusieurs structures hétérogènes dont l'altitude maximale est estimée à 1.7 km. L'algorithme de détection est ensuite appliqué à toute la série temporelle de profils mesurés le 18 mai 2005.

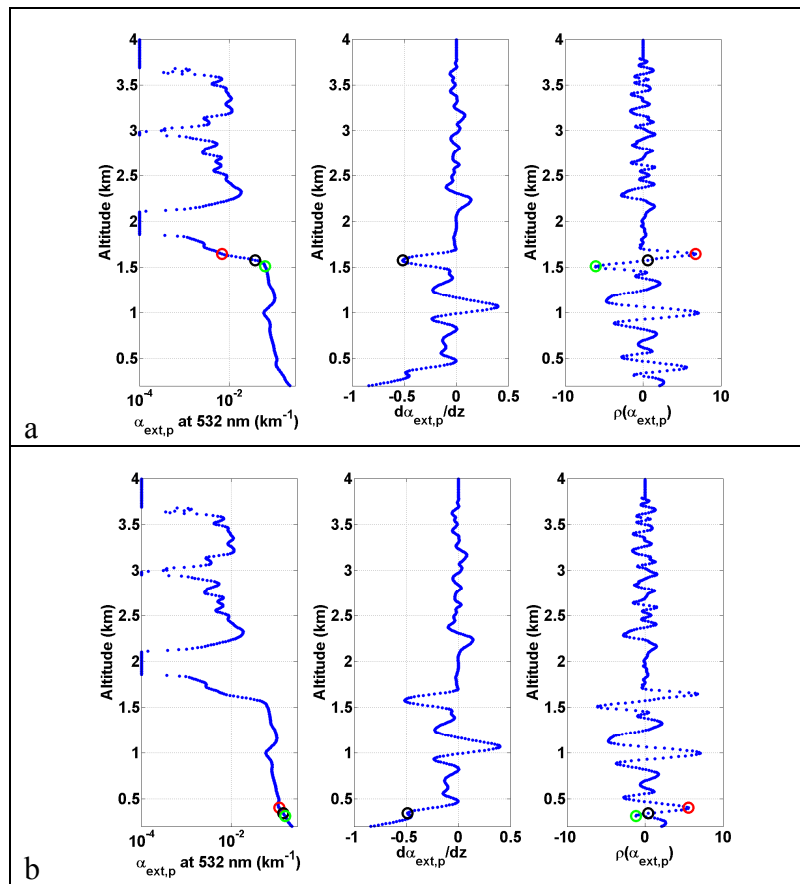


Fig. 3.33 : Détection de structures particulières sur un profil lidar obtenu à Paris le 18 mai 2005 vers 04 :00 UTC. La base, le milieu et le sommet de la transition traitée sont donnés en vert, noir et rouge, respectivement. Le milieu de la zone est fourni par la recherche du maximum de gradient dans la dérivée du profil de coefficient d'extinction. La base et le sommet de la transition sont donnés par les extrema locaux du rayon de courbure au voisinage du point milieu. (a) : détection du sommet de la couche résiduelle, (b) : détection du sommet de la couche nocturne.

Comme le montre la Fig. 3.34, le sommet de la CLA fluctue à cause de l'entraînement produit par les thermiques en décrivant un cycle diurne typique. La couche résiduelle des polluants qui avaient été piégés en altitude au cours de la nuit est érodée vers 07 :00 UTC lors du développement matinal de la CLA.

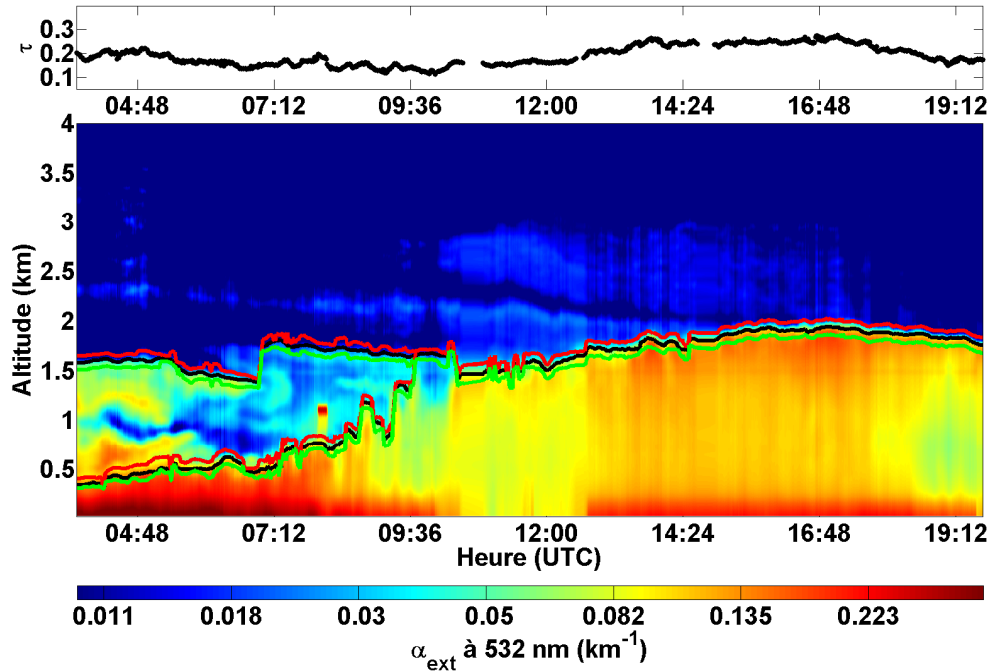


Fig. 3.34 : Evolution de la couche limite urbaine observée le 18 mai 2005 à Paris. Elle est exprimée en coefficient d'extinction à 532 nm mesuré par le LESAA. La couche de transition est située entre les courbes rouge et verte. Elle correspond à la zone d'entraînement. Le développement de la couche limite et l'érosion de la couche résiduelle sont clairement visibles.

La couche limite résiduelle semble s'être comportée selon le schéma de Oke (1988) plutôt que celui de Stull (1988). Le schéma de Stull ne présente en effet pas d'évolution de la couche résiduelle durant la phase de transition nuit-jour, alors que celui de Oke montre clairement un effondrement durant la nuit sur une certaine altitude (Fig. 3.35).

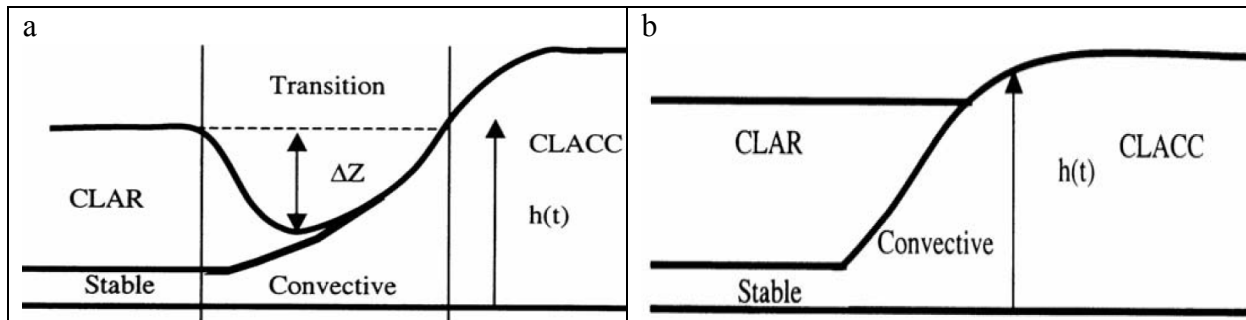


Fig. 3.35 : Schémas conceptuels d'évolution de la CLA continentale convective (CLACC) et de la couche résiduelle (CLAR) durant la transition nocturne/diurne, proposés par Oke (a) et Stull (b). Les différences d'évolution sont dues à des différences de comportement des variables thermodynamiques et autres paramètres météorologiques, qui ont une influence sur la physico-chimie de l'atmosphère.

### 3.3.9.3 Estimation des facteurs d'émission dans la CLA

La connaissance précise de la CLA par la mesure lidar est un atout indéniable pour estimer les facteurs d'émission (FE) des composants dont le temps de vie chimique est plus grand que le temps de vie dynamique des cellules convectives de la CLA urbaine. En supposant que la CLA est bien mélangée et pour des vitesses de vent horizontal faibles, il est alors possible de

calculer les FE lorsque le trafic est bien établi et que le sommet de la CLA demeure contant. C'est le cas des mesures réalisées durant la campagne LISAIR où les masses d'air principalement en provenance du boulevard Georges Pompidou au Sud-ouest apportent les polluants issus du trafic à une vitesse d'environ  $1 \text{ m.s}^{-1}$ . Les FE ont été estimés pour des périodes de 2h15 la matin (entre 05 :15 et 07 :30 à UTC) et l'après-midi (entre 12 :30 et 19 :30 UTC) où la hauteur du sommet de la CLA valait 0.55 km et 1.8 km respectivement. Les FE du cadastre d'émission d'AIRPARIF ([www.airparif-asso.fr](http://www.airparif-asso.fr)) établis en 2000 avec une résolution horizontale de  $1 \text{ km}^2$  sont également présentés dans le Tableau 3.2.

	Couplage lidar / mesures in situ		Registre AIRPARIF ( $1 \text{ km}^2$ de résolution)	
	matin	après-midi	matin	après-midi
Trafic (véhicules/h) Rue de Rivoli	1620	1747	-	-
Trafic (véhicules/h) Bd. Georges Pompidou	4674	4624	-	-
Hauteur de la CLA (km)	0.55	1.84	-	-
FE des PM10 ( $\mu\text{g.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$ )	0.18	1.6	0.7 ( $\pm 0.8$ )	0.5 ( $\pm 0.5$ )
FE des BC ( $\mu\text{g.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$ )	0.06	0.22	0.12 ( $\pm 0.12$ )	0.08 ( $\pm 0.07$ )

Tableau 3.2 : Facteurs d'émission (FE) restitués le 18 mai 2005 à Paris par le couplage du lidar aux mesures in situ et extraits de la base de données d'AIRPARIF. Les écarts-types du registre de FE au-dessus de la région parisienne sont donnés entre parenthèses. Source : Chazette et al. (2008).

L'inventaire d'émissions fournit des FE présentant une grande variabilité. De plus, l'advection horizontale étend la distance de 4 km le matin et 9 km l'après-midi. Comme Paris intra muros représente un domaine d'environ 10 km de diamètre, l'évaluation des FE inclut probablement également une contribution du trafic en banlieue de Paris. Toutefois, les plages des FE estimés par le couplage entre lidar et mesures in situ et des FE fournis par l'inventaire d'émission se recouvrent généralement.

#### 3.3.9.4 Détection de couches dans la troposphère libre

Le lidar permet aussi d'observer des situations où la structure spatio-temporelle des diverses couches est plus complexe (Fig. 3.36a). De façon similaire à ce qui a été observé le 18 mai (Fig. 3.34) au même endroit, la CLA urbaine se développe avec l'augmentation de chaleur à la surface par la source solaire, avec toutefois un retard d'une heure. On distingue également le mélange de l'air de la couche résiduelle venant d'en haut avec celui de la CLA vers 12 :00 UTC. Comme indiqué précédemment, la CLA est le réservoir des particules émises localement et la distribution verticale des particules dans cette couche présente une structure assez homogène due au mélange convectif. Dans la soirée, les particules émises en surface s'accumulent dans la CLA dont la hauteur se réduit pour former la couche nocturne en produisant, entre autres, une augmentation notable de la concentration en particules et donc une réduction de la visibilité. La série temporelle présente d'autre part des valeurs d'extinction anormalement élevées entre 3.5 et 4 km tout au long de la journée, et des valeurs fortes vers 3 km à partir de 15 :00 UTC. Comme indiqué par le rapport de dépolarisation superposé au profil d'extinction, la nature des aérosols est assez différente. A 3 km d'altitude, les aérosols ne présentent pas de rapport de dépolarisation significatif, tandis que les aérosols situés dans la couche supérieure sont caractérisés par des valeurs d'extinction de  $0.047 \text{ km}^{-1}$ , donc deux fois plus élevées que les niveaux de fond. Cela est en accord avec le fait que les

aérosols à 3 km sont des produits organiques secondaires : leurs sources peuvent être des feux au Sud du Portugal ou de l'Espagne conformément aux rétrotrajectoires arrivant sur Paris à une altitude de 3 km (Fig. 3.36b).

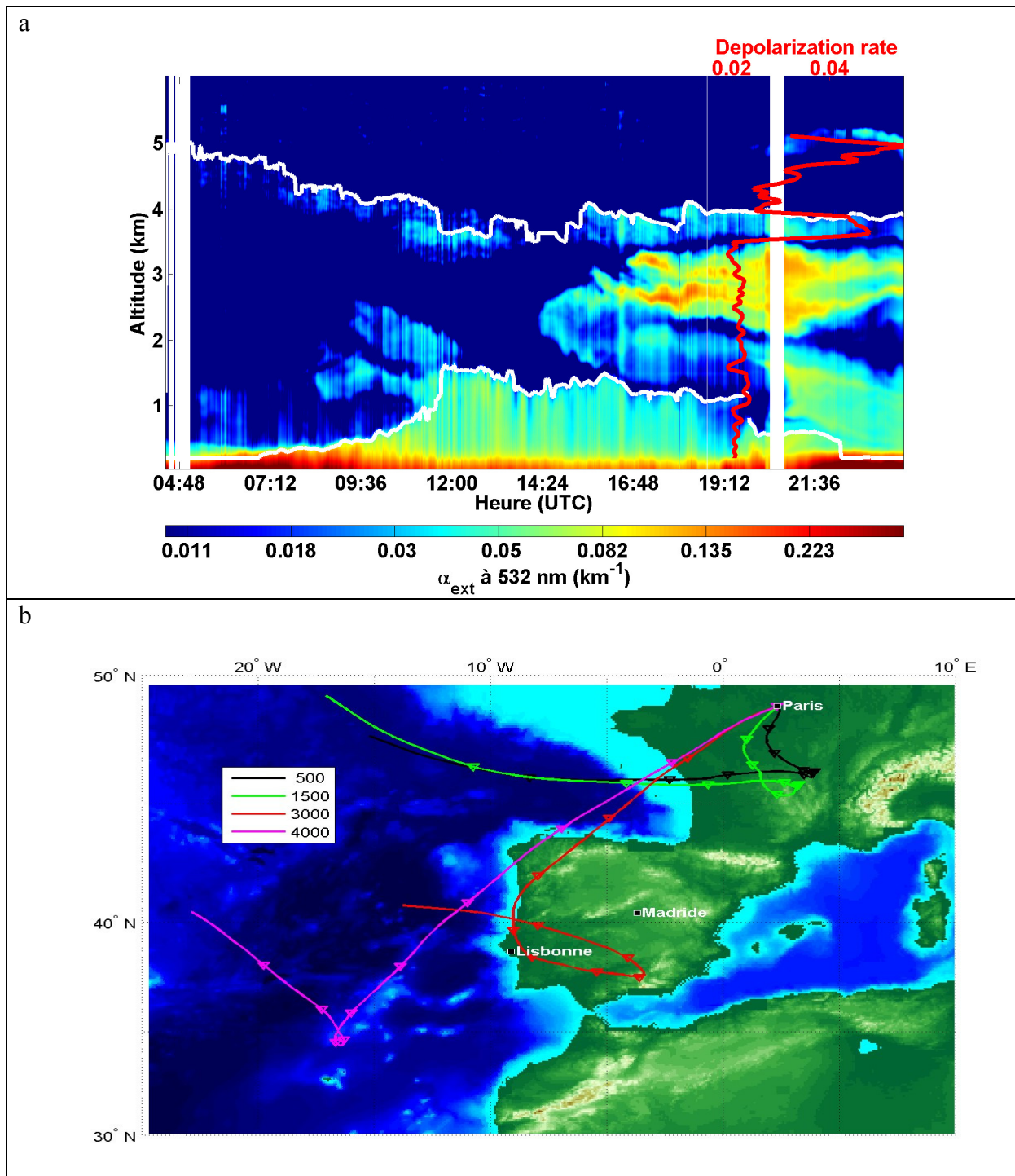


Fig. 3.36 : (a) : Série temporelle de profils lidar (exprimés en coefficient d'extinction) obtenus à 532 nm le 26 mai 2005 à Paris par le LESAA. La courbe blanche repère le milieu de la couche de transition de la CLA et de la couche de particules la plus élevée. (b) : Rétrotrajectoires de masses d'air arrivant sur Paris le 26 mai 2005 aux altitudes repérées par les différentes couleurs. Des triangles sont disposés sur les trajectoires toutes les 12 heures.

Les rétrotrajectoires arrivant à 4 km suggèrent également que les aérosols de cette couche supérieure puissent être des poussières minérales en provenance du Sahara et transportées au-dessus de l'Océan Atlantique. Le vent géostrophique étant de l'ordre de  $\sim 10\text{-}20 \text{ m.s}^{-1}$  dans la troposphère libre, le temps de déplacement du panache entre l'Afrique et la France est d'environ deux jours : la troposphère libre apparaît par conséquent comme le lieu du transport à longues distances. Une fois le panache injecté dans la troposphère libre, le déplacement se produit majoritairement en couches par la forte stabilité de la troposphère libre, comme c'est le cas ici.

#### ***3.3.9.5 Application à l'observation spatiale : la validation de CALIOP***

L'habilité des lidars à détecter de façon fiable les structures de particules et de nuages depuis le sol peut être mise à profit lors de la validation des mesures d'un lidar embarqué sur satellite. C'est l'approche que nous avons privilégiée lors d'une première étape de validation du lidar CALIOP embarqué sur le satellite CALIPSO (Kim et al., 2008). Les observations réalisées par le lidar SNU (Sect. 3.3.3) situé à Séoul en Corée du Sud ( $37.46^\circ\text{N}$ ,  $126.95^\circ\text{E}$ ) ont été utilisées pour servir de références aux mesures de CALIOP passant à proximité de ce site (distance maximale au sol de 10 km). La validation du lidar spatial a été envisagée pour différentes conditions de scènes atmosphériques claires et nuageuses : aérosols dans la CLA en situation de ciel clair (Fig. 3.37a et 3.37b), couches multiples d'aérosols sous des nuages semi-transparents (Fig. 3.37c et 3.37d), nuages épais. Pour les comparaisons, le SNR de CALIOP a dû être amélioré par le moyennage de 18 profils sur sa trace de part et d'autre du site du SNU. Le temps d'échantillonnage est donc de  $\sim 0.9 \text{ s}$ , ce qui engendre une couverture horizontale de  $\sim 6.0 \text{ km}$ .



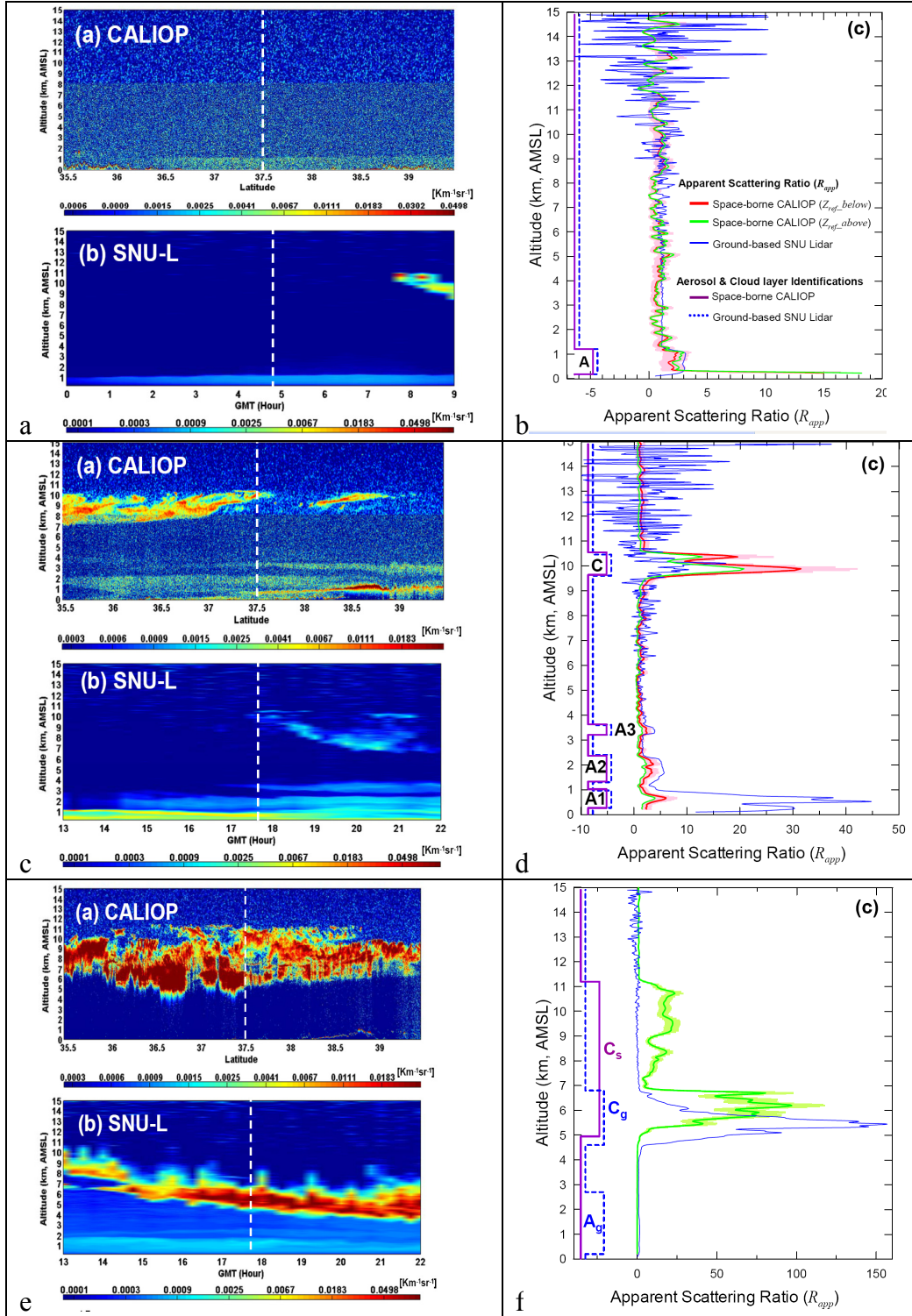


Fig. 3.37 : Profils verticaux de rétrodiffusion totale atténuée à 532 nm (a,c,e) restitués par les lidars CALIOP et SNU et  $R_{app}$  à 532 nm (b,d,f). Les profils de  $R_{app}$  ont été calculés en choisissant une altitude de référence haute (courbes vertes) entre 10 et 11 km (b) ou entre 12 et 13 km (d,f) et une altitude de référence basse (courbes rouges) entre 5 et 6 km (b,d). Les labels « A » et « C » désignent respectivement la présence d'une couche d'aérosols et d'un nuage (« cloud ») ; les indices « g » et « s » signifient « ground » (sol) et « spatial ». D'après : Kim et al. (2008).



Pour les deux lidars, les rapports de diffusion apparents présentent des structures de couches d'aérosols et de nuages similaires, que ce soit pour une CLA en condition de ciel clair (Fig. 3.37b) ou pour des couches d'aérosols superposées sous des cirrus (Fig. 3.37d). Aucune différence significative n'est observée en choisissant l'altitude de référence car l'atténuation optique entre ces références n'est pas trop importante. Notons que la CLA est cependant détectée de manière plus claire avec un ciel sans nuage quand la référence est choisie dans les hautes altitudes. Les comparaisons montrent que la structure de la CLA est bien restituée par les deux lidars en absence de nuages. En présence de nuages semi-transparents, les altitudes des cirrus sont bien identifiées et les trois couches distinctes d'aérosols sont bien repérées, même si leurs structures exactes diffèrent légèrement. L'accord entre les altitudes des sommets et bases des couches d'aérosols et de nuages est inférieur à 100 m.

A l'inverse, en présence de nuages denses, l'information sur l'altitude du sommet (de la base) du nuage n'est fiable que sur les mesures du lidar CALIOP (SNU) en raison de fortes atténuations optiques du signal rétrodiffusé ; des divergences sont ainsi observées entre les deux signaux lidar, que ce soit pour la restitution des altitudes de sommet ou de base de nuage, ou pour la détection d'une couche de particules sous ce nuage (Fig. 3.37f). La pénétration du faisceau laser à travers ces épais nuages est en effet très perturbée, ce qui limite fortement la détection. Dans tous les autres cas, la mesure lidar se révèle être un outil essentiel pour caractériser précisément la contribution des différentes structures verticales à la signature optique de la colonne atmosphérique.

## 3.4 Conclusions

---

Dans ce chapitre, nous avons présenté l'ensemble des instruments à notre disposition et les variables géophysiques qu'ils permettaient de mettre en évidence. Outre les observations in situ visant à l'obtention des paramètres chimiques, microphysiques et optiques, la télédétection permet la mesure à distance des propriétés optiques auxquelles elle est directement sensible. La télédétection permet d'avoir certaines informations sur le contenu ou les propriétés optiques des aérosols résolues verticalement (sondage actif par lidar) et de manière intégrée sur la colonne atmosphérique (sondage passif). Le principal désavantage du lidar est lié à sa source lumineuse monochromatique qui ne permet pas de caractériser tous les paramètres des particules (indice complexe de réfraction, sphéricité des aérosols). Les particules ont des compositions très différentes et appartiennent à diverses classes de taille. A moins de disposer d'un lidar multi-longueurs d'onde, on est contraint, pour lever les inconnues inhérentes à ce système d'observation, de réaliser des études de fermeture qui permettent la restitution d'une propriété par plusieurs moyens indépendants convergeant vers un résultat plus fiable et réduisant sensiblement les incertitudes. Pour une étude complète des particules, la synergie de mesures entre un lidar, des instruments in situ (masse, granulométrie, propriétés optiques locales, composition chimique...) et des appareils de mesures passifs est nécessaire. C'est l'objet des Chapitres 4 et 5.

## Chapitre 4

---

# 4 Restitution de l'indice complexe de réfraction par complémentarité entre mesures in situ et mesures de télédétection active et passive

Pour une taille donnée, les propriétés optiques d'une population sont déterminées par les indices de réfraction des particules (Van de Hulst, 1957 ; Bohren and Huffman, 1983). L'ACRI a par conséquent été étudié par de nombreux auteurs et un grand nombre de données sur des éléments spécifiques a été publié pour des composés organiques et inorganiques purs, comme pour des minéraux. Ce chapitre présente d'abord la manière de prendre en compte les diverses valeurs d'indices de réfraction caractérisant chacun des éléments qui constituent l'aérosol. Les principales lois de mélange sont alors brièvement décrites et les limites de ces approches « chimiques » sont discutées. On propose alors une méthodologie alternative permettant d'aboutir à une détermination de l'indice de réfraction équivalent d'un mélange à partir de mesures microphysiques et optiques.

### 4.1 Notion de réfraction spécifique

---

On commence par considérer la relation entre les propriétés macroscopiques comme l'indice de réfraction (ou la constante diélectrique, cf. Eq. 2.24) et les propriétés microphysiques comme la polarisabilité moléculaire. Un ensemble de molécules réagit avec le champ électrique incident comme un ensemble de dipôles électriques. Lorsqu'un diélectrique est placé dans un champ électrique, la polarisation  $P$  est donnée par :

$$P = \rho \cdot \frac{N_A}{M} \cdot \alpha_{pol} \cdot \epsilon_0 \cdot E_{loc} \quad (4.1)$$

où est  $\rho$  la masse volumique,  $M$  la masse molaire du matériau,  $\alpha_{pol}$  la polarisabilité moyenne par molécule,  $\epsilon_0$  la constante diélectrique du vide,  $E_{loc}$  la champ électrique local moyen auquel est soumis une molécule et  $N_A$  le nombre d'Avogadro. Notons que le champ électrique local  $E_{loc}$  est généré par les moments dipolaires des molécules entourant la molécule cible. La polarisation peut aussi être reliée au champ électrique appliqué  $E$  :

$$P = (\epsilon_r - 1) \cdot \epsilon_0 \cdot E \quad (4.2)$$

où  $\epsilon_r$  est la permittivité relative du matériau.

Une combinaison des Eq. 4.1 et 4.2 donne :

$$\epsilon_r = 1 + \alpha_{pol} \cdot \rho \cdot \frac{N_A}{M} \cdot \frac{E_{loc}}{E} \quad (4.3)$$

L'expression de Lorenz (1960) permet d'exprimer  $E_{loc}$  en fonction de  $E$  :

$$E_{loc} = E + \frac{P}{3 \cdot \epsilon_0} \quad (4.4)$$

Soit :

$$E_{loc} = \frac{1}{3} \cdot (\epsilon_r + 2) \cdot E \quad (4.5)$$

On obtient alors la relation de Clausius-Mossotti :

$$\frac{\epsilon_r - 1}{\epsilon_r + 2} = \frac{\alpha_{pol} \cdot \rho \cdot N_A}{3 \cdot M} \quad (4.6)$$

qui conduit à la relation de Lorentz-Lorenz pour l'indice de réfraction  $n$  :

$$m_s = \frac{n^2 - 1}{n^2 + 2} = \frac{\alpha_{pol} \cdot \rho \cdot N_A}{3 \cdot M} \quad (4.7)$$

$m_s$  est appelée réfraction spécifique.

Remarquons que cette équation fondamentale relie l'indice de réfraction à la masse volumique  $\rho$ . Ces deux paramètres ont été largement étudiés mais sont souvent utilisés de manière indépendante par les communautés de l'optique et de la dynamique des aérosols. La relation 4.7 suggère une augmentation linéaire de la réfraction spécifique avec la masse volumique. Physiquement, conformément à l'optique moléculaire, l'indice de réfraction résulte en effet de la réponse commune des dipôles électriques excités par un champ électrique externe. Or, le nombre de dipôles dans un volume donné est fortement lié à la masse volumique. On peut noter que l'idée est similaire à l'approximation en dipôles discrets (DDA) pour calculer la diffusion de la lumière par des particules non sphériques (Sect. 2.4.2).

Cette notion de réfraction spécifique est importante car elle caractérise un composé unique, mais, comme nous le verrons en Sect. 4.3, elle s'applique également à un mélange pour lequel on peut définir une polarisabilité, masse volumique et masse molaire équivalentes. On pourra donc avoir recours à des pondérations simples pour un milieu homogène ou hétérogène composé de différents composés.

## 4.2 Indices de réfraction des principaux constituants de l'aérosol

---

Les aérosols atmosphériques sont généralement des mélanges de compositions chimiques différentes. En résumant les valeurs publiées dans la littérature (Tableau 4.1), on peut classer grossièrement les ACRI des constituants majeurs de l'aérosol en trois classes :

- un composant absorbant la lumière : BC,
- un composant non absorbant,
- l'eau.

#### 4. Restitution de l'indice complexe de réfraction

Tableau 4.1 : Indices complexes de réfraction pour différentes compositions chimiques d'aérosols répertoriés dans la littérature pour le domaine UV-visible.

BC	OC	Ammonium Sulfate	Ammonium Nitrate	SS	Partie soluble dans l'eau (indéfinie)	Dust	Sources
		1.52 – 1.54					McGraw (1928)
		1.53	1.55				Handbook of chemistry and physics (1963)
1.56 – 0.46i (combustion d'acétylène)							Dalzell and Sarofin (1969)
1.57 – 0.53i (combustion de diméthylméthane)							Dalzell and Sarofin (1969)
				$1.5 - 2.10^{-8}i$	1.53 – 0.005i	1.53 – 0.008i	Volz (1973)
1.57 – 0.56i							d'Alessio et al. (1975)
						1.56 – 0.006i	Patterson et al. (1977)
1.95 – 0.66i							Faxvog and Roessler (1978) Ackerman and Toon (1981) Covert al. (1990)
1.75 – 0.44i						1.53 – 0.008i	Shettle and Fenn (1979)
1.70 – 0.80i							Pluchino et al. (1980) Egan and Hilgenman (1980)
1.90 – 0.55i							Lee et al. (1981)
1.56 – 0.47i							Ouimette and Flagan (1982)
1.97 – 0.65i	1.5	1.42			1.59 – 0.089i		Hasan and Dzubay (1983)
	1.54		1.53				Sloane (1983)
1.75 – 0.40i		1.53		$1.49 - 1.53$	1.55 – 1.62		Kent et al. (1983) Redemann et al. (2000)
1.87 – 0.22i (combustion à 450 °C)					1.58		Smith (1984)
1.90 – 0.55i	1.55	1.53			1.53 – 0.005i		Sloane (1984, 1986)
					1.53 – 0.005i		Hänel (1987)
2.0 – 0.90i	1.55	1.53	1.55		1.53 – 0.005i		Sloane (1991)
1.75 – 0.55i à 450 nm 0.54i à 550 nm 0.53i à 700 nm		$1.43 - 10^{-8}i$ 1.53 – 0.006i	1.53 – 0.006i	$1.50 - 10^{-8}i$		1.50 – 0.01i	d'Almeida et al. (1991)
		1.53			1.544		Tang and Munkelwitz (1994)

#### 4. Restitution de l'indice complexe de réfraction

						1.56 – 0.006i	Tegen et al. (1996)
	1.55 – 0.005i						Von Hoyningen – Huene et al. (1998)
1.96 – 0.66i							Seinfeld and Pandis (1998)
	1.55 – 0.005i						Chazette and Liousse (2001)
1.85 – 0.56i							Marley et al. (2001)
						1.53 – 0.0005i à 865 nm 0.008i à 412 nm	Moulin et al. (2001)
	1.65 – 0.0019i (substances humiques)						Hoffer (2006)
	1.69 – 0.0016i (substances humiques)						Hoffer (2006)
1.91 – 0.52i							Bond and Bergstrom (2006)
1.5 – 0.47i (avec large proportion de “vides”)							Bond and Bergstrom (2006)
1.87 – 0.22i	1.40						Schkolnik et al. (2007)
						1.52 – 0.008i	Raut and Chazette (2008b)

Le premier élément est le carbone élémentaire. BC est considéré avant tout comme le seul élément absorbant de la phase particulaire d'une atmosphère à pollution anthropique (Hansen et al., 1979 ; Japar et al., 1986 ; Horvath, 1993 ; Lioussse et al., 1993 ; Fuller et al., 1999) à cause de son indice complexe de réfraction caractérisé non seulement par une forte partie réelle, mais aussi par une partie imaginaire extrêmement élevée en comparaison avec tout autre composant chimique de l'aérosol. Pourtant, certains éléments chimiques comme les oxydes de fer (Sokolik et al., 1993 ; Raut et al., 2008a) dans les poussières minérales peuvent également absorber significativement le rayonnement solaire, en particulier lors d'événements de poussières désertiques. Le second élément est l'eau qui peut seulement diffuser le rayonnement incident avec un indice de réfraction petit de  $1.33 - 0.0i$  dans le spectre visible. L'eau joue un rôle important en raison de processus d'humidification des particules dans l'atmosphère. En dehors du carbone suie et de l'eau, le reste de la composition de l'aérosol diffuse principalement la lumière avec un indice très similaire, avec une partie réelle de l'ordre de  $1.45 - 1.58$  et une partie imaginaire proche de zéro (Tableau 4.1.). En se basant sur des calculs de Mie et en conditions sèches, la partie organique de l'aérosol contribue à moins de 10 % de l'absorption du rayonnement pour un aérosol en région urbaine.

### 4.3 Lois de mélange pour l'indice de réfraction

---

Une des approches pour traiter des mélanges inhomogènes est appelée théorie du milieu effectif par laquelle le mélange est considéré comme un matériau homogène caractérisé par des quantités effectives (masse volumique, masse molaire, indice de réfraction, polarisabilité), qui sont calculées à partir de certaines lois de mélange. On définit alors en particulier un indice de réfraction équivalent  $n_e$  pour l'aérosol qui dépend des indices de chacun des constituants de la particule, mais également de la façon dont est structurée l'aérosol : état de mélange interne ou externe, structure homogène ou en couches. Naturellement, cet indice est souvent défini par des lois de mélange chimique. De telles lois de mélange pour l'indice de réfraction ont fait l'objet de nombreuses études. Une des lois les plus communément utilisées est celle dite de Lorentz-Lorenz qui est donnée par (Heller, 1965) :

$$m_{se} = \sum_i f_i \cdot m_{si} \quad (4.8)$$

Où  $m_{se}$  et  $m_{si}$  désignent respectivement les réfractions spécifiques effective et du  $i^{\text{ème}}$  constituant du mélange, et  $f_i$  la fraction volumique de ce constituant dans le mélange. Cette loi de mélange a été largement utilisée dans l'étude des aérosols atmosphériques (Stelson and Seinfeld, 1982 ; Stelson, 1990 ; Tang and Munkelwitz, 1994 ; Tang, 1996). Elle peut être établie à partir de l'Eq. 4.7 en introduisant les masse volumique effective  $\rho_e$ , masse molaire effective  $M_e$  et polarisabilité effective  $\alpha_{pol,e}$  du mélange par les simples relations :

$$\rho_e = \sum_i \rho_i \cdot f_i \quad (4.9)$$

$$\frac{1}{M_e} = \sum_i \frac{y_i}{M_i} \quad (4.10)$$

$$\alpha_{pol,e} = \sum_i x_i \cdot \alpha_{pol,i} \quad (4.11)$$

où  $x_i$  et  $y_i$  désignent les fractions molaire et massique du constituant  $i$ , et de la relation de passage :

$$f_i = \frac{\rho_e}{\rho_i} \cdot y_i = \frac{\rho_e \cdot M_i}{\rho_i \cdot M_e} \cdot x_i \quad (4.12)$$

Dans le cas où les indices de réfraction des différents composants de l'aérosol sont proches les uns des autres (cas d'un système dit quasi-homogène), on peut écrire, à partir de la formule de Taylor appliquée à l'indice autour de la valeur  $n_0$  :

$$m_{si} = \frac{n_i^2 - 1}{n_i^2 + 2} \approx \frac{n_0^2 - 1}{n_0^2 + 2} + \frac{6 \cdot n_0}{(n_0^2 + 2)^2} \cdot (n_i - n_0) \quad (4.13)$$

$$m_{se} = \frac{n_e^2 - 1}{n_e^2 + 2} \approx \frac{n_0^2 - 1}{n_0^2 + 2} + \frac{6 \cdot n_0}{(n_0^2 + 2)^2} \cdot (n_e - n_0) \quad (4.14)$$

C'est-à-dire :

$$n_e = \sum_i f_i \cdot n_i \quad (4.15)$$

Il s'agit de la loi de mélange linéaire moyenne volumique pour l'indice de réfraction de l'aérosol. Cette loi a été fréquemment utilisée par le passé en raison de la simple restitution de l'indice de réfraction effectif qu'elle implique (Hänel, 1968 ; Ouimette and Flagan, 1982 ; Hasan and Dzubay, 1983 ; Lowenthal et al., 2000 ; Hand and Kreidenweis, 2002). Toutefois, cette loi n'est pas physiquement bien justifiée, ni réaliste pour les particules atmosphériques. En effet, les aérosols ne vérifient généralement pas l'hypothèse de valeurs similaires pour les indices de réfractifs de leurs éléments constitutifs. Par conséquent, la loi de mélange plus générale de Lorentz-Lorenz (Eq. 4.8) devrait donner de meilleurs résultats que la loi de mélange linéaire pour le calcul des ACRI effectifs.

Chylek et al. (1988) mentionnent sept lois de mélange permettant d'estimer l'ACRI en état de mélange interne. Elles comprennent :

- la moyenne volumique des indices de réfraction,
- la moyenne volumique des constantes diélectriques,
- la loi de mélange de Bruggeman,
- la loi de mélange de Maxwell-Garnett,
- la loi de mélange de Maxwell-Garnett inversée,
- la loi de Chylek-Srivastava,
- la méthode du guide d'onde.

Parmi ces sept lois de mélange permettant d'estimer l'ACRI effectif d'éléments mélangés, trois d'entre elles sont souvent appliquées : la moyenne volumique des indices de réfraction, les lois de mélange de Bruggeman et de Maxwell-Garnett. La loi de mélange la plus appropriée dépend de l'arrangement géométrique des différents composants du mélange (Chylek et al., 2000 ; Lesins et al., 2002).

- L'approche linéaire de pondération volumique suppose que les particules sont en mélange interne quasi-homogène et que chacun des constituants contribue à la diffusion et à l'absorption proportionnellement à sa fraction volumique. C'est la méthode usuelle la plus simple et facile à implémenter dans un code numérique.
- L'approche de Maxwell-Garnett suppose que la particule est constituée d'inclusions absorbantes, sphériques, distribuées de manière aléatoire et emprisonnées dans une matrice homogène diffusante (Chylek et al., 1988). La loi de Maxwell-Garnett peut également être utilisée dans le cas de plusieurs particules insolubles en suspension dans une solution (Lesins et al., 2002). Elle est également applicable dans le cadre de notre étude.

- La loi de mélange de Bruggeman est utilisée dans le cas d'un mélange de particules insolubles où les composés de l'aérosol sec sont éparpillés (Lesins et al., 2002).

Il existe une extension directe de ces lois de mélange pour un mélange à  $N$  éléments (Chylek et al., 2000). Toutefois, pour appliquer ces deux dernières lois, il est nécessaire de résoudre des fonctions plutôt que de passer par des calculs directs, ce qui complique les codes.

La différence entre les lois de pondération linéaire volumique, de Maxwell-Garnett et de Bruggeman est liée à la disparité des indices de réfraction individuels. Lesins et al. (2002) ont conduit une étude de sensibilité sur ces trois lois de mélange d'ACRI les plus utilisées pour des aérosols atmosphériques typiques. L'effet des lois de mélange plus complexes (par rapport à la loi linéaire) sur la partie réelle de l'ACRI peut être négligé car les erreurs introduites sont inférieures à 0.5 %. En ce qui concerne la partie imaginaire, en tenant compte du fait que la fraction volumique moyenne de BC au sein des particules sèches est de l'ordre de 10 %, la loi de mélange volumique introduirait une surestimation de 10-15 % de la partie imaginaire, en comparaison avec les relations de Maxwell-Garnett et Bruggeman. Cependant, en se basant sur les calculs optiques qui en résultent, Lesins et al. (2002) ont conclu que les ACRI n'étaient pas sensibles au choix de la règle de mélange, où les plus larges écarts relatifs apparaissent pour les petites fractions massiques des inclusions de BC, et l'effet sur les propriétés optiques de l'ensemble des aérosols atmosphériques était typiquement inférieur à 1 %. Les auteurs ont donc suggéré d'utiliser la procédure simple de moyennage sur les volumes pour estimer l'ACRI moyen d'un mélange interne. Schkolnik et al. (2007) ont également effectué une comparaison entre les lois de mélange volumique et de Maxwell-Garnett en calculant l'effet de l'indice de réfraction moyen des particules issues de feux de biomasse avec leurs compositions chimiques. Leur résultat a également montré que les parties réelles calculées étaient similaires et que les différences observées sur les parties imaginaires par ces deux méthodes se situaient généralement entre 2 et 8 %.

### 4.4 Restitution de l'ACRI pour l'aérosol parisien

---

Il n'est cependant pas toujours aisé d'accéder localement à la composition chimique de l'aérosol, d'autant que celle-ci n'est pas nécessairement reproductible d'un site à l'autre. L'objectif de l'article intitulé « Retrieval of aerosol complex refractive index from a synergy between lidar, sunphotometer and in situ measurements during LISAIR experiment », publié dans *Atmospheric Chemistry and Physics* par J.C. Raut et P. Chazette, est de restituer l'indice de réfraction équivalent de l'aérosol différemment, en particulier à partir de la mesure optique. Cette étude qui vise à une meilleure compréhension du cycle de vie de l'aérosol dans la basse et moyenne troposphère (entre 0 et ~6 km d'altitude), passe par une approche impliquant de nombreux instruments. Une telle approche est nécessaire afin de permettre des études dites de fermeture qui permettront de déterminer les concentrations et les propriétés des polluants. Dans le cadre de la campagne LISAIR, une expérience a été mise en œuvre pour contraindre au mieux les différentes propriétés chimiques, structurales et optiques de l'aérosol sur Paris intra-muros.

Cette campagne réalisée sur l'esplanade de l'Hôtel de Ville de Paris entre les 9 et 29 mai 2005 combine différents types d'observations faisant appel à la détection in situ de composés particuliers et à la détection à distance par mesures lidar ou radiométriques. Il s'agit de



mieux comprendre la répartition des polluants particuliers dans la colonne d'air en région urbaine, d'évaluer les transferts de polluants à la surface lors des transitions nuit/jour, de suivre le cycle journalier des concentrations de particules proches de la rue et dans la couche limite planétaire, d'établir une représentation en trois dimensions de la répartition des concentrations d'aérosols sur Paris et le long des grands axes de circulation comme le périphérique et d'affiner, à terme, les données utilisées pour les outils de modélisation de la pollution urbaine afin de mieux appréhender et prédire les épisodes de pollution mais aussi de mieux gérer les crises majeures liées à la présence d'éléments toxiques dans l'air de la ville.

Les mesures d'aérosols in situ ont été effectuées par l'intermédiaire de têtes de prélèvement  $PM_{10}$  placées au-dessus d'un camion de mesures à une hauteur approximative de 4 m par rapport au sol. Afin d'assurer le bon fonctionnement des têtes  $PM_{10}$ , les débits dans les lignes de prélèvement ont été asservis à l'aide de débitmètres massiques pour un débit optimal de 1  $m^3/h$ . Les mesures météorologiques ont été réalisées à partir d'un mât météorologique à une hauteur de l'ordre de 5 m par rapport au sol. Les prélèvements sur filtres dédiés à l'analyse chimique des aérosols ont été effectués sur le toit du camion à une hauteur approximative de 3.5 m par rapport au sol dans une cloche de protection contre la pluie. La station de mesure avait à son bord le système lidar LESAA équipé de la polarisation, comme dans la campagne POVA (Chazette et al., 2005a). Le système lidar LAUV était soit positionné sur un pied à côté de la station, soit placé à bord d'un véhicule léger.

La Sect. 4.5, dérivée de Raut and Chazette (2007), décrit précisément la méthode de restitution de l'ACRI à partir de mesures de granulométrie, de diffusion, de rétrodiffusion lidar et d'épaisseur optique. L'indice étant composé de deux inconnues (partie réelle et partie imaginaire), deux équations sont requises pour résoudre le système. On recherche alors l'ensemble des couples de partie réelle et partie imaginaire qui vérifient deux contraintes indépendantes. La partie réelle, sensible à la diffusion, est bien contrainte par la connaissance du coefficient de diffusion mesuré par le néphélomètre. La deuxième condition peut être apportée par le BER qui contraint bien la partie imaginaire de l'indice. Ce BER est déterminé par une méthode itérative lors de l'inversion de l'équation lidar par l'épaisseur optique mesurée par un photomètre (Chazette, 2003). La connaissance des profils verticaux d'humidité relative permet, à partir de la restitution des indices de réfraction, d'estimer des profils de coefficients d'extinction tels qu'ils pourraient être déterminés par inversion des signaux lidar.

## 4.5 Application (Article de Raut and Chazette, 2007)

### Retrieval of aerosol complex refractive index from a synergy between lidar, sunphotometer and in situ measurements during LISAIR experiment

J.-C. Raut<sup>1</sup> and P. Chazette<sup>1</sup>

[1]{Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement, Laboratoire mixte CEA-CNRS-UVSQ, CEA Saclay, F-91191 Gif-sur-Yvette, France}

#### Abstract

Particulate pollutant exchanges between the streets and the Planetary Boundary Layer (PBL), and their daily evolution linked to human activity were studied in the framework of the Lidar pour la Surveillance de l'Air (LISAIR) experiment. This program lasted from 10 to 30 May 2005. A synergetic approach combining dedicated active (lidar) and passive (sunphotometer) remote sensors as well as ground based in situ instrumentation (nephelometer, aethalometer and particle sizers) was used to investigate urban aerosol optical properties within Paris. Aerosol complex refractive indices were assessed to be  $1.56-0.034i$  at 355 nm and  $1.59-0.040i$  at 532 nm, thus leading to single-scattering albedo values between 0.80 and 0.88. These retrievals are consistent with soot components in the aerosol arising from traffic exhausts indicating that these pollutants have a radiative impact on climate. We also discussed the influence of relative humidity on aerosol properties. A good agreement was found between vertical extinction profile derived from lidar backscattering signal and retrieved from the coupling between radiosounding and ground in situ measurements.

#### 1. Introduction

It is now clearly recognized that anthropogenic aerosol particles play a substantial role in the radiative forcing of the earth's climate, as they influence the radiation balance of the Earth, mostly through scattering and absorption processes on both incoming and outgoing radiation and by acting as cloud condensation nuclei (e.g. D'Almeida et al., 1991; Ackerman and Chung, 1992; Lenoble, 1993; Léon et al., 2002). Nevertheless quantification of aerosol microphysical and optical properties and their dependency on relative humidity (RH) is needed to reduce the large associated uncertainty (e.g. Penner et al., 1994; IPCC, 2001; Carrico et al., 2003). The correct modelling of radiative forcing by aerosols as well as the development of aerosol remote sensing techniques require a full range of

observations. They include measurements of the aerosol chemical composition, number and/or mass size distribution, and optical properties to retrieve key parameters such as the spectral dependency of the aerosol complex refractive index (ACRI) (e.g. Sokolik and Toon., 1999; Sokolik et al., 2001). The determination of ACRI is often provided from bulk chemical compositions and known values of the refractive indices of pure compounds (e.g. Ouimette and Flagan, 1982; Hittenberger and Puxbaum, 1993; Bond et al., 1998; Chazette and Liousse, 2001). The choice of this traditional approach is driven by the high dependency of ACRI on the aerosol chemical composition. Several studies focused on the determination of ACRI for dusts particles. Volz (1973) reported his laboratory experiments on bulk dust samples in the shortwave range and in the infrared spectral region. Patterson et al. (1977) used Saharan dust samples and laboratory measurements to produce one of the most widely used data sets of imaginary part of ACRI for mineral dust in the range 300–700 nm. Ground based measurements in the spectral range from 0.5 to 1.0  $\mu\text{m}$  have also given the imaginary part of ACRI for desert dust (Sokolik et al., 1993; Carlson and Caverly, 1977; Tomasi et al., 1983). Marley et al. (2001) presented preliminary results for carbon soot samples generated in the laboratory and for standard diesel soot samples in the UV/visible spectral range. Remote sensing retrievals have been investigated by numerous authors (Kaufman et al., 2001; Dubovik et al., 2002; Sinyuk et al., 2003; Todd et al., 2007). Ignatov et al. (1995) proposed refractive index values from a validation using sun photometer measurements off the west coast of North Africa and in the Mediterranean Sea. Moulin et al. (1997) compared Meteorological Service-derived (0.7  $\mu\text{m}$ ) and sun photometer-derived aerosol optical thicknesses to retrieve desert aerosol refractive index. Multiwavelength backscatter and extinction lidar measurements also enable to retrieve ACRI: a detailed description of such an inversion scheme has been given by Müller et al. (1999) and applied to pollution plumes advected from the European continent out over the Atlantic Ocean (Müller et al., 2002).

On the other hand, pollutants emitted in industrialised regions, particularly due to automobile traffic, are now clearly recognized as one of the most important source of anthropogenic aerosol particles and megacities emerge as an important research topic in atmospheric chemistry and effect on climate. Several experimental campaigns were conducted to document the atmospheric pollution in urban areas, for instance in Athens (Kambezidis et al., 1995; Durieux et al., 1998; Eleftheriadis et al., 1998), Los Angeles (Lurmann et al., 1997), Paris (Menut et al., 2000; Chazette et al., 2005b), Sao Paulo (Landulfo et al., 2003), Marseilles (Cros et al., 2004; Cachier et al., 2005). Local experimental studies focused on the microphysical, chemical and optical aerosol properties are clearly required to better characterize urban particles. Except scarce studies, e.g. a partial molar fraction approach (Stelson, 1990), little was known about urban ACRI. This work therefore focuses on their determination in the framework of an intensive one-month field campaign.

In this paper we present a retrieval method to infer urban aerosol optical properties in Paris PBL, particularly the complex refractive index at 355 and 532 nm. This methodology relies on a synergetic approach using in situ and active/passive optical measurements. A field campaign has been used: the Lidar pour la Surveillance de l'AIR (LISAIR) experiment devoted to a better understanding of the exchanges of particulate pollutants between surface (streets) and the planetary boundary layer (PBL) took place in Paris during May 2005.

### 2. Instrumental set-up

LISAIR experiment was scheduled between 10 and 30 May 2005 and was located in Paris above town hall place. The geographic location of Paris, far from the coast, with a low topography, and far (about 200 km) from other populated areas, makes this region an ideal place to study the respective contributions of dynamical and chemical processes to the photochemistry and to identify interactions between dynamics and air pollution. Two lidar systems were used and in situ instruments devoted to aerosol measurements (nephelometer, particle sizer, aethalometer) were simultaneously operated in a ground based mobile experimental station.

#### 2.1. Active remote sensing instruments

Two lidar systems were used during LISAIR experiment. The lidar equation gives the range-corrected signal for the emitted wavelength as a function of the range, the total backscatter and extinction coefficients, a constant that characterizes the lidar system, the background sky radiance and the overlap function (Measures, 1984). The signal in the upper clear air is normalized on the molecular contribution that we derived from

an ancillary climatic radiosounding database as in Chazette et al. (1995). The signal is corrected from the background sky radiance, which is simultaneously measured with the lidar profile. The overlap factor is a correcting factor for short-range heights where the field of view of the telescope does not overlap the laser beam. The overlap factor is measured as the difference at short range between the raw lidar measurements and the calculated lidar signal considering a homogeneous aerosol layer (Sicard et al., 2002; Chazette, 2003).

**The lidar “Lidar pour l'Etude et le Suivi de l'Aérosol Atmosphérique” (LESAA)** has been developed by the Commissariat à l'Energie Atomique (CEA) to document the atmospheric reflectivity at 532 nm in the lower troposphere over polluted areas. LESAA uses sub-micron aerosols as a tracer to document the lower troposphere structure with a vertical resolution of 7.5 m (Chazette et al., 2005a). The sky background radiance is measured from the lidar signal at high altitude (45 to 55 km) where the laser beam could be considered to be negligible. The lidar measurement is associated with an overlap factor close to 1 at 200 m above the ground level (agl). After correction, we retrieved the lidar signal until ~50 m agl within a relative error close to 20% (Chazette et al., 2005b). Lidar signal is proportional to particle concentration so that lidar-derived atmospheric backscattering is generally observed to be large in the atmospheric boundary layer and in elevated aerosol layers inside the free troposphere (residual aerosol or dust aerosol layers). An example of the temporal evolution of LESAA aerosol extinction coefficient profiles is given on Fig. 1 for the 18 May, 2005. The different sources of uncertainty are well described by Chazette et al. (1995). The mean relative error for the extinction coefficient is generally less than 10% when the inversion of lidar profiles is constrained using a sun photometer (Chazette, 2003) and when the relative humidity stays lower than 75%, as it was the case here. The PBL height can be also retrieved from lidar measurements considering the radius of curvature of the profiles following Menut et al. (1999).

**The lidar “Lidar Aérosol Ultra-Violet (Aéroporté)” (LAUV(A))** has been developed by the Commissariat à l'Energie Atomique (CEA) and the Centre National de la Recherche Scientifique (CNRS) to follow the aerosol dispersion in the street and through the PBL. It is compact, embarquable and eye safe and operates at the wavelength of 355 nm with a resolution along the line of sight of 1.5 m. The lidar is associated with an overlap factor close to 1 at 100 m agl. Further description of this instrument can be found on the website: <http://www.leosphere.fr>. It was used for the first time, in its operational mode during LISAIR experiment. The inversion of the LAUV(A) measurements is similar to those of LESAA measurements.

### 2.2. Passive remote sensing instrument

Optical thickness data were obtained from the AErosol RObotic NETwork (AERONET: (<http://aeronet.gsfc.nasa.gov/>)), from a station based in Pierre et Marie Curie University. The **sunphotometer** instrument performs integrated measurements of solar light extinction to retrieved aerosol optical properties (optical thickness and ACRI, at several wavelengths, and Angström exponent) (Holben et al., 1998). The channels used for this study are centred at 440 nm and 675 nm. The AERONET database gives a maximal absolute uncertainty of 0.02 for the optical thickness, independent of the aerosol loading. The optical thickness  $\tau$  at the lidar wavelength  $\lambda$  has been assessed using the Angström exponent  $a$  and the aerosol optical thickness at 440 nm  $\tau_{440}$  according to the Angström relation (Angström, 1964):

$$\tau = \tau_{440} \cdot \left( \frac{\lambda}{440} \right)^{-a} \text{ where } a = \frac{\ln\left(\frac{\tau_{675}}{\tau_{440}}\right)}{\ln\left(\frac{440}{675}\right)} \quad (1)$$

The complex refractive index retrieval, following Dubovik et al. (2000), can be obtained for aerosol optical thicknesses larger than 0.4 at 440 nm and is associated with an absolute error of 0.04 for the real part and a relative uncertainty of about 30% for the imaginary part (strongly absorbing aerosol). Optical thicknesses observed above Paris are however generally lower than 0.4 at 440 nm: the accuracy on complex refractive index is thus not guaranteed. The uncertainty on the Angström exponent has been shown to be 0.03 for aerosol optical thickness of 0.2 (Hamonou et al., 1999). Fig. 2 shows optical thickness from AERONET data of level 2 and Angström exponent used in the following for May 18.

### 2.3. In situ measurements

**The three-wavelength (450, 550 and 700 nm) nephelometer** (manufactured by TSI) was installed onboard the Mobile Aerosol Station (MAS). It measures the aerosol-scattering coefficient in a 7–170° scattering angle range through a PM10 inlet head. To take into account the non-observed scattering angles, a correction factor has been assessed from Mie computations to be close to 1.020 for Paris urban aerosols. This assessment was done using the retrieved aerosol mean size number distribution and the mean complex refractive index on the 18 May, 2005 (see Sect. 4 and Fig. 4). The three wavelength instrument scattering chamber was maintained at about 35–40% relative humidity (dry aerosol conditions). The mean relative uncertainty on the measurements is less than 10% and mainly due to the variability of the relative humidity inside the instrument (Bodhaine et al., 1991). In dry conditions, the

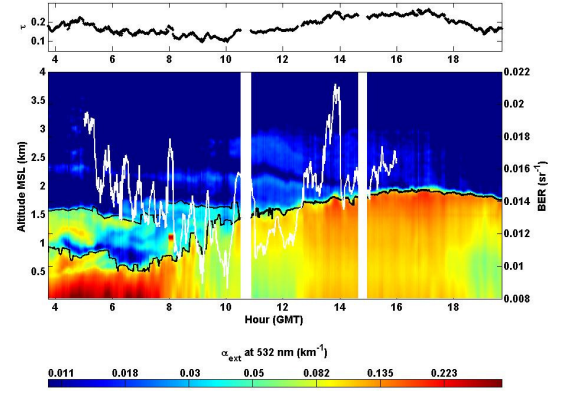


Figure 1: Temporal evolution of the vertical profile of aerosol extinction coefficient at 532 nm above Paris on May 18, 2005 between 3 and 20 UTC. The upper part of the figure represents the corresponding total aerosol optical thickness. Both the PBL and the residual layer heights are given in a black curve. Daytime evolution of the BER at 532 nm is given in white.

relative uncertainty after calibration is around a few per cent (evaluated from the reproducibility of laboratory measurements). Angström exponent calculated from 450 and 550 nm channels is represented on Fig. 2. The difference observed with the sun photometer is mainly due to the spectral variability of the absorbing part of aerosols. Altitude dependence can also explain the different values of Angström parameter in Fig.2 derived from the instruments.

**The aethalometer instrument** (manufactured by Magee Scientific Company) permitted the assessment of black carbon concentration (BC) within an average time of 2 minutes. The atmospheric samplings were performed through a PM10 inlet head. The instrument, calibrated with a constant value of 19 m<sup>2</sup> g<sup>-1</sup>, is sensitive to the light absorbent part of the aerosols (Hansen and Novakov, 1990). This specific cross-section is established for material trapped on the filter and is not valid for particles in the ambient atmosphere. Moreover, an artificial enhancement of the absorption coefficient by a factor  $\approx 2$  could be found due to multiple scattering into the filter fibers (Bodhaine, 1995). During the LISAIR campaign the aethalometer measurements were calibrated using simultaneous black carbon concentration retrieved from coulometer analyses of filter samplings as described in Randriamiarisoa et al. (2006). According to Fig. 3, the calibration coefficient is 1.5, which gives a final specific cross-section of 28.5 m<sup>2</sup>·g<sup>-1</sup>. The calibration of the aethalometer instrument on chemical filters has been carried out for mass concentrations averaged over the whole spectrum of aethalometer wavelengths, i.e. from 370 to 950 nm. Relative uncertainty on the BC measurements performed with this instrument is close to 10% (Chazette et al., 2003). According to Bond et al. (1999), the instrument is found

## 4. Restitution de l'indice complexe de réfraction

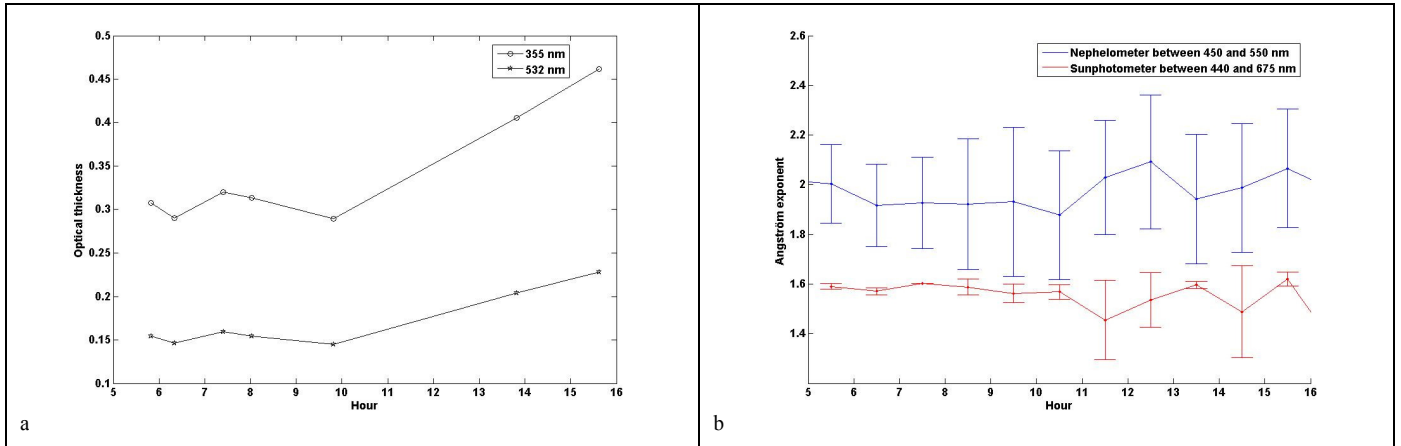


Figure 2: Temporal evolution of aerosol properties retrieved from both AERONET and nephelometer data in Paris on May 18, 2005. On the top (a), evolution of optical thickness at 355 nm and 532 nm. On the bottom (b), evolution of the Angström exponent using 440 and 675 nm channels. Angström exponent deduced from nephelometer measurements is also represented. Vertical bars (b) indicate the standard deviation on hourly averaged data.

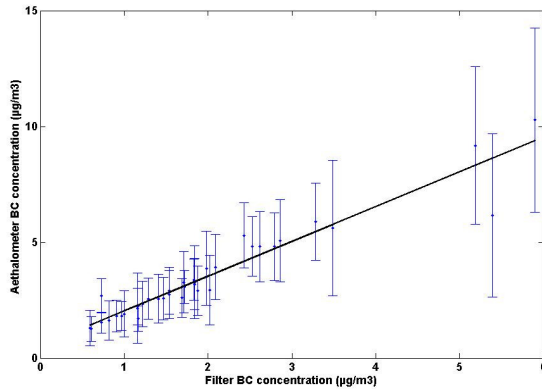


Figure 3: Calibration curve of black carbon concentration measured by aethalometer ( $\text{BC}_a$ ) against the black carbon concentration measured on filters ( $\text{BC}_f$ ). Vertical bars indicate standard deviations on aethalometer measurements. The correlation ratio of this fitting is close to 0.96 for a linear law given by  $\text{BC}_a = 1.5 \text{BC}_f + 0.54$ .

to interpret about 2% of the scattering as absorption; the measured absorption is about 22% higher than the reference absorption. This correction has been taken into account in this paper.

**The Electrical Low Pressure Impactor (ELPI)** is a real-time particle size spectrometer designed at the Tampere University of Technology (Dekati, Ltd., <http://www.dekati.com/elpi.shtml>) for real-time monitoring of aerosol particle size distribution (Keskinen et al., 1992). The ELPI measures airborne particle size distribution in the size range from 0.028 to 10.03  $\mu\text{m}$  within 12 channels. The principle is based on charging, inertial classification, and electrical detection of the aerosol particles. The instrument consists primarily of a corona charger, low pressure cascade impactor

and multi-channel electrometer. It is used to retrieve the aerosol number size distribution at the surface level. The accuracy on the aerosol number concentration measurement is about 5%, following manufacturer user manual.

### 3. Backscatter-to-extinction ratio retrieval

This part describes the contribution of our observations to a synergy between lidar, sun photometer and in situ measurements to retrieve the aerosol optical properties: scattering and extinction coefficients, ACRI, single-scattering albedo and backscatter-to-extinction ratio (BER), inverse of the so called lidar ratio. The procedure we used is shown on Fig. 4 and fully described below.

Lidar data have been inverted using a well-known method, based on Bernoulli's differential form of the propagation equation (Klett 1981). The backscatter lidar equation is underdetermined due to its dependence on the two unknowns, backscatter coefficient and extinction coefficient (e.g. Klett, 1981, 1985; Hughes et al., 1985; Sasano et al., 1985; Bissonnette, 1986; Kovalev, 1993; Chazette et al., 1995). Sun photometer measurements were then used to constrain the lidar inversion. It was thus possible to determine an equivalent BER of the entire aerosol vertical column with an iterative procedure (Chazette, 2003), while varying BER between 0.005 and 0.055  $\text{sr}^{-1}$ , which includes the most probable values for aerosols in an urban area. This procedure is considered convergent when the variation between sun photometer and lidar derived aerosol optical thicknesses is lower than  $10^{-4}$  (Fig. 4). The result is not dependant of this initial value chosen to be 0.014  $\text{sr}^{-1}$ . The iterative method is determined by a dichotomist approach where BER is increased (decreased) if the lidar-derived optical thickness is larger (lower) than the sun photometer-derived optical thickness (see Fig. 4a).

#### 4. Restitution de l'indice complexe de réfraction

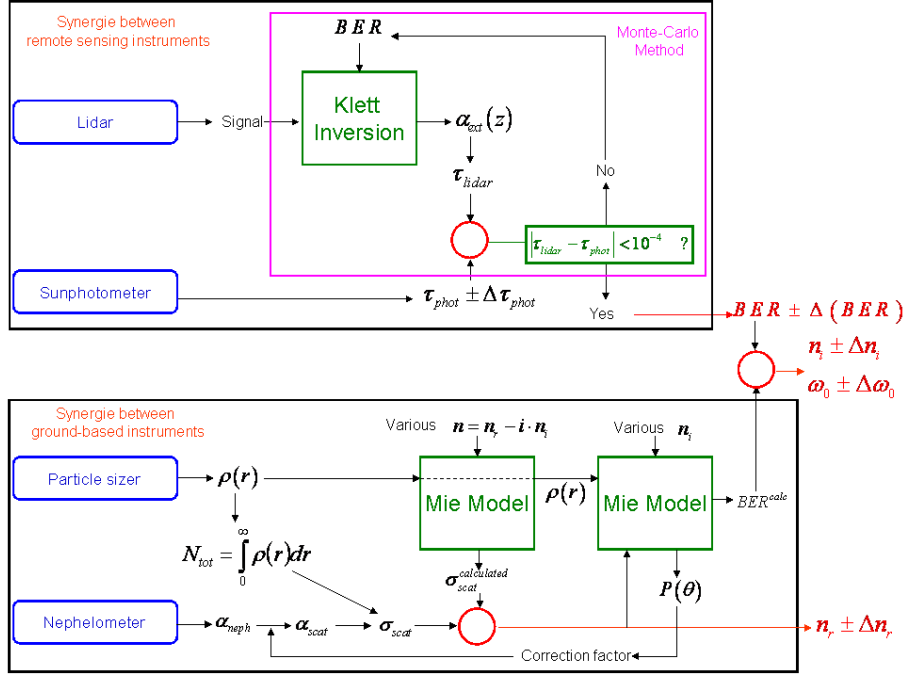


Figure 4: Schema of the synergetic approach to retrieved aerosol optical properties: backscatter-to-extinction ratio BER (a), complex refractive index (real  $n_r$  (b) and imaginary  $n_i$  parts), single-scattering albedo  $\omega_0$  from optical thicknesses ( $\tau_{phot}$  for sunphotometer and  $\tau_{lidar}$  for lidar), integrating extinction coefficient  $\alpha_{ext}(z)$ , number size distribution  $\rho(r)$  and scattering-cross section  $\sigma_{scat}$ . Scattering cross-section is the ratio between scattering coefficient  $\alpha_{scat}$ , obtained from nephelometer scattering coefficient  $\alpha_{neph}$  and phase function  $P(\theta)$ , and the total number of particles  $N_{tot}$ .

The histogram of the aerosol backscatter-to-extinction ratio assessed from daytime lidar measurements is reported in Fig. 5. Optical thickness values used to constrain each lidar profile inversion have been averaged on a one-hour basis. BER values are distributed following an almost Gaussian curve. The mean value calculated for the significant values (low rate of relative humidity) of  $BER$  is close to  $0.014 \text{ sr}^{-1}$  (respectively  $0.012 \text{ sr}^{-1}$ ) with a standard deviation of  $0.002 \text{ sr}^{-1}$  (respectively  $0.003 \text{ sr}^{-1}$ ) at  $532 \text{ nm}$  (respectively  $355 \text{ nm}$ ). The  $BER$  temporal evolution at  $532 \text{ nm}$  is also given in Fig. 1 and its variability can be likely ascribed to convective movements in the PBL whose oscillations stem from thermal phenomena. Fig. 6 gives the hourly average of the  $BER$  at  $355$  and  $532 \text{ nm}$  retrieved from the synergy between lidar and sunphotometer, and from the sunphotometer alone on May 18. Uncertainties on  $BER$  retrieval will be discussed in Sect. 5.

According to other measurements reported in literature,  $BER$  values lie between  $0.010$  and  $0.018 \text{ sr}^{-1}$  in a polluted boundary layer over Leipzig in Germany and between  $0.014$  and  $0.030 \text{ sr}^{-1}$  in the polluted centre of the United States. Those results are

referred by Anderson (2000). Catrall et al. (2005) employed

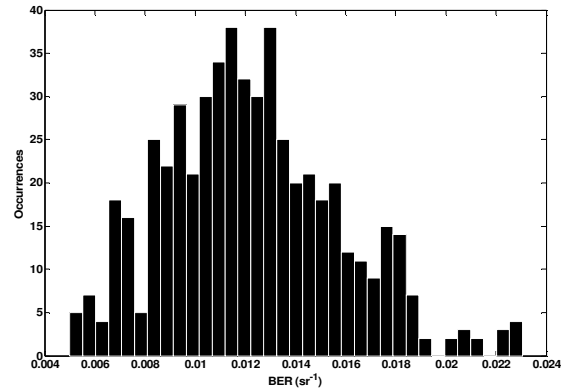


Figure 5: Histogram of the aerosol backscatter-to-extinction ratio ( $BER$ ) assessed from the synergy between lidar and sunphotometer measurements at  $355 \text{ nm}$  on May 18, 2005

ground based retrievals of aerosol properties from the global aerosol network AERONET for several urban and industrial locations and found lidar ratios ( $1/BER$ ) at  $550 \text{ nm}$ :  $74 \text{ sr}$  in Aire Adour (France),  $74 \text{ sr}$  in Cr teil (France),  $76 \text{ sr}$  in Lille (France),  $72 \text{ sr}$  in GISS (USA),  $73 \text{ sr}$  in GSFC (USA) and  $70 \text{ sr}$

## 4. Restitution de l'indice complexe de réfraction

Table 1: Mean complex refractive index determined on the ground and with AERONET station in Paris. The temporal variability is given under brackets and the uncertainties under parenthesis. Both have been calculated as standard deviations.

Wavelength	Real part of index	Imaginary part of index	Single-scattering albedo
355 nm	1.561 (0.017) {0.111}	0.028 (0.009) {0.013}	0.879 (0.036) {0.063}
532 nm	1.587 (0.009) {0.112}	0.044 (0.004) {0.026}	0.797 (0.015) {0.097}
441 nm (Aeronet)	1.424 (0.04) {0.099}	0.041 (0.012) {0.026}	0.774 (0.030) {0.072}
673 nm (Aeronet)	1.397 (0.04) {0.055}	0.036 (0.010) {0.022}	0.739 (0.030) {0.081}

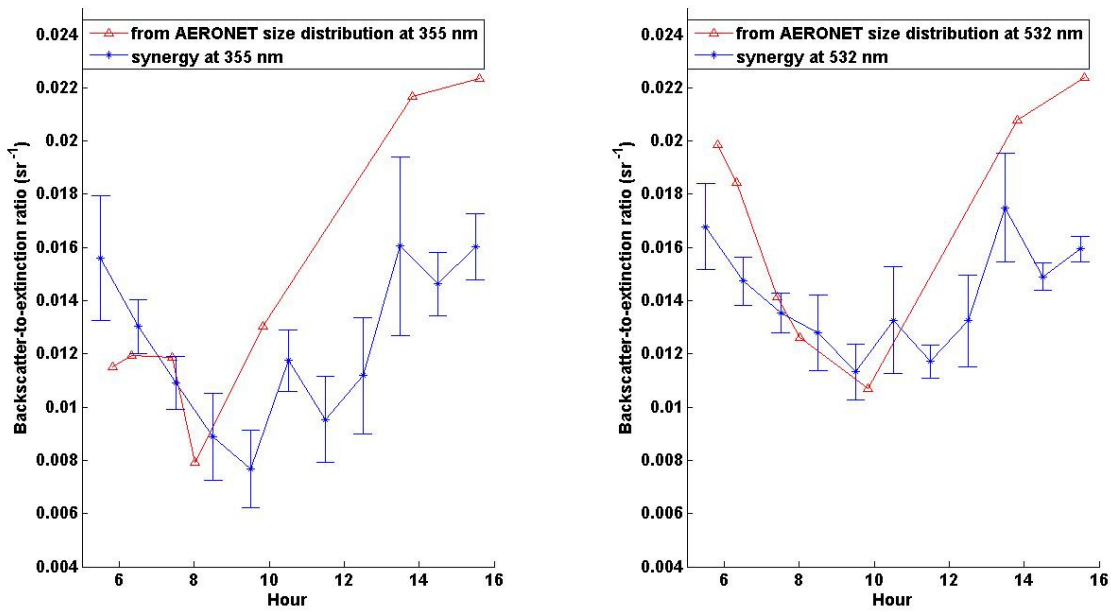


Figure 6: Daytime evolution of BER on May 18 retrieved from the synergy between lidar and sun photometer at 355 nm (left) and 532 nm (right) and from AERONET data (channels 441 nm and 673 nm) using Mie calculation based on AERONET size distribution and complex refractive index given in Table 1. Vertical bars are the standard deviation on hourly averaged data.

in Mexico City (Mexico). These values are in very good agreement with our lidar ratio at 532 nm (71 sr). A BER close to 0.014 sr<sup>-1</sup> for anthropogenic aerosols at 532 nm as retrieved in our study, reminds the presence of a predominant fine mode in size distribution mainly due to automobile traffic sources. This BER is consistent with the value of about 0.014 sr<sup>-1</sup> found in Paris area at 532 nm within the framework of the ESQUIF program where airborne lidar measurements were performed (Chazette et al., 2005b). The BER value associated to prevailing automobile traffic pollution is in the range 0.013–0.018 sr<sup>-1</sup> as shown by Chazette et al. (2002) from summertime measurements over Paris. It mainly corresponds to aerosols constituted of carbonaceous core coated with non-absorbent material.

### 4. Aerosol complex refractive index (ACRI) and single-scattering albedo retrievals

Despite its relative importance, there have been only a few attempts to estimate ACRI from aerosol optical properties. Takamura et al. (1994) obtained an estimate of the imaginary part for tropospheric aerosols after assuming a real part, whereas Ferrare et al. (1998) focused on the retrieval of the real part of ACRI from a combination of scanning Raman lidar with simultaneous airborne aerosol in situ distribution measurements. In the following we present our approach to retrieve the ACRI using the synergy between remote sensing and in situ measurements.



### 4.1. Real part of the refractive index

The real part of ACRI has been assessed using both in situ particle sizer and nephelometer measurements. We have used the nephelometer measurements at 450 and 550 nm to retrieve the scattering coefficient at the lidar wavelength of 355 and 532 nm following the Angström law. Various real parts  $n_r$  between 1.3 and 1.9 and imaginary parts  $n_i$  between  $10^{-8}$  and 0.2 have been considered as input values of a look-up table. This table contains scattering cross-sections deduced from Mie theory that will be compared to the measured cross-section, as described on Fig. 4. Calculations have been performed considering spherical aerosols. Such an aspect could be validated when regarding the lidar depolarized ratio that has been found to be close to 4% in the PBL. The lognormal aerosol size distribution has been fitted using an approach well described in Randriamiarisoa et al. (2006) from the measurements of the particles sizers. Mainly a bimodal size distribution has been retrieved including the nucleation and accumulation modes. The contribution of a coarse mode was not significantly observed. We neglected the nucleation mode in optical computations since its contribution to scattering efficiency is smaller than 5%, which is lower than uncertainties calculated on scattering-cross sections (Chazette et al., 2005b). An example of the comparison between the look-up table and the aerosol cross-section derived from the measurements is given in Fig. 7 for May 18 between 12 and 13 UTC for the lidar wavelength of 532 nm. Note that May 18 is representative of the mean daily conditions of the LISAIR campaign. In the likely range of the imaginary part of the complex refractive index (between  $10^{-8}$  and  $5 \cdot 10^{-2}$ ), the real part can be assessed to be close to 1.533 with a standard deviation of  $\sim 0.008$ . Indeed, the observed dispersion is very weak for imaginary parts lower than 0.05, which is a plausible domain for anthropogenic aerosols from automobile traffic (Chazette et al., 2005b). Such an approach has been generalized to follow the temporal evolution of the real part of ACRI for May 18 given in Fig. 8.

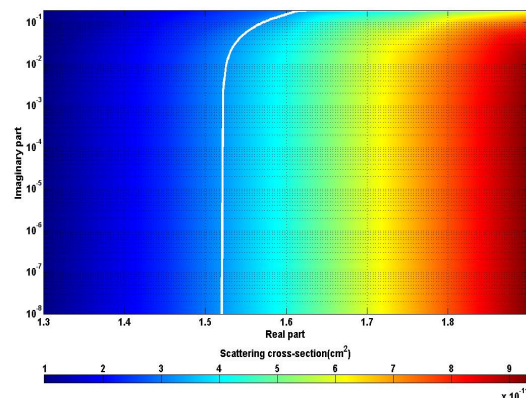


Figure 7: Aerosol scattering cross-sections calculated for various real and imaginary parts of the complex refractive index (colour bar associated to the look-up table) at the wavelength of 532 nm. The mean value of the scattering cross section retrieved from in situ measurements ( $3.37 \cdot 10^{-11} \text{ cm}^2$ ) is also given in white for May 18 between 12 and 13 UTC.

### 4.2. Imaginary part of the refractive index and single-scattering albedo

The determination of the imaginary part of ACRI and the single-scattering albedo relies on a comparison between the previous BER used to invert lidar data and different values of BER calculated from size distribution with the real part retrieved from the look-up table (Fig. 9). This comparison requires a second use of Mie model (Fig. 4). The representativeness of in situ measurements of the aerosol aloft is ensured if the relative humidity does not significantly vary between the surface layer and the mixed layer: the humidity rate is low on the surface ( $\approx 28\%$ ) and following the radiosoundings of Trappes (located at the Southwestern part of Paris suburb) does not exceed 60 % on the top of the boundary layer. From lidar measurements, neither clouds nor dust layers have been observed over the PBL on 18 May, 2005.

As a result on May 18 between 12 and 13 UTC, the imaginary part of the complex refractive index has been assessed to be  $0.032 \pm 0.003$ , and the single-scattering albedo is  $0.82 \pm 0.01$ . The temporal evolution of the imaginary part of ACRI is also given in Fig. 10. The associated single scattering albedos are given in Fig. 11. The single scattering albedo generally decreases when the wavelength increases for pollution aerosols as shown by Randriamiarisoa et al. (2004), with mean values of 0.88 at 355 nm and 0.80 at 532 nm (Table 1).

Aethalometer measurements can besides enable to independently assess the mean value of the ACRI imaginary part considering real parts calculated in the previous section. A closure study, based on a comparison between the specific absorption cross-section computed on the one hand through a Mie model and given on the other hand by the aethalometer



## 4. Restitution de l'indice complexe de réfraction

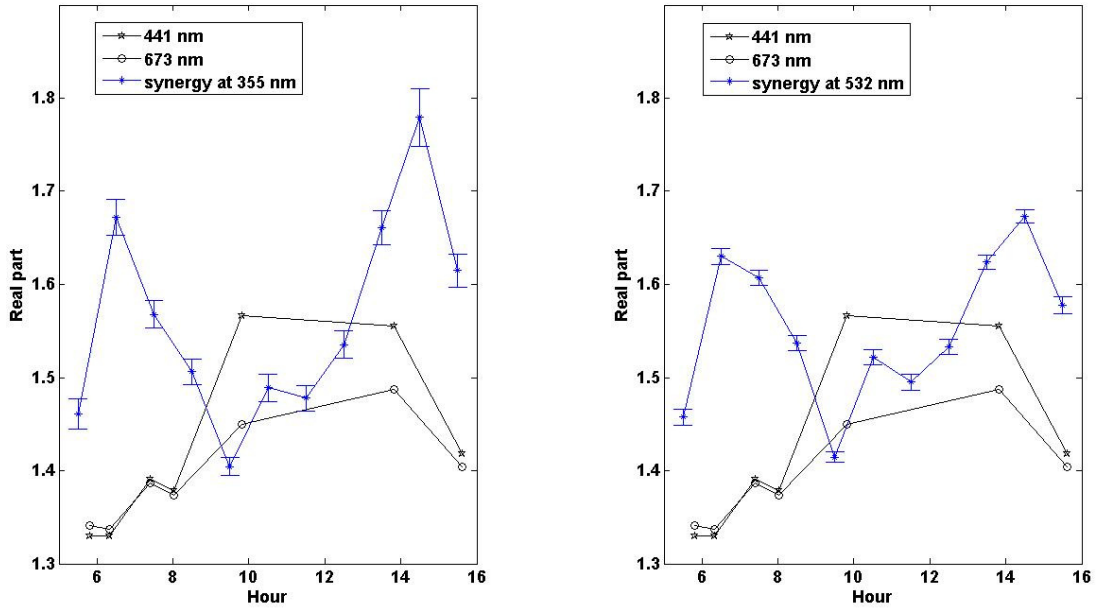


Figure 8: Daytime evolution of the real part of ACRI ( $n_r$ ) retrieved from the synergy between lidar, sun photometer and in-situ instruments at 355 nm (left) and 532 nm (right) and from AERONET data (channels 441 nm and 673 nm). Vertical bars are the standard deviation on hourly averaged data.

Table 2: Real aerosol refractive index determined on the ground level for different periods on 18 May, 2005. The error on the restitution of these values is 0.01.

Wavelength	05:00 – 06:00	12:00 – 13:00	15:00 – 16:00
450 nm	1.52	1.45	1.57
550 nm	1.54	1.46	1.58
700 nm	1.61	1.49	1.64

( $28.5 \text{ m}^2 \text{g}^{-1}$ , sect. 2.3), has been performed. The latter can be considered as an equivalent specific cross-section for the equivalent wavelength of the aethalometer, which is about 550 nm. The imaginary part retrieved from this approach ( $0.055 \pm 0.004$ ) is found in accordance with results given in Table 1 at 532 nm considering the natural variability of ACRI imaginary part (Fig. 10). This high value is however very close to maximum values obtained in the synergy presented in this article. No variability has been observed in retrievals on average using aethalometer (see Fig. 3). Due to calibration issues and problems regarding the overestimation of absorption by parasitic scattering effects and the spectral dependency, high uncertainties are expected when determining the imaginary part of ACRI by aethalometer.

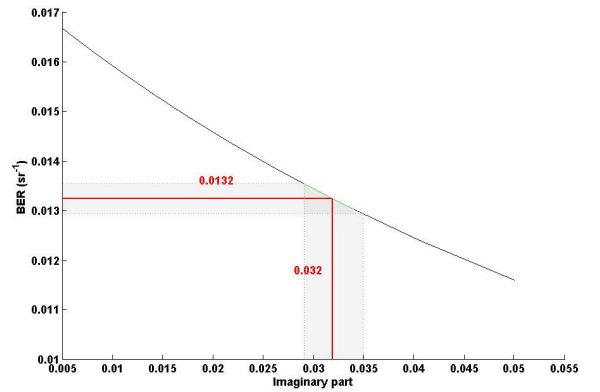


Figure 9: Imaginary part of the complex refractive index at 532 nm retrieved from a mean value of BER between 12 and 13 UTC on May 18. The gray band wrapping the curve represents the uncertainty on the retrieved value.

### 4.3. Discussion

The AERONET website has provided data over Paris in May 2005 for ACRI. Averages and standard deviations are given in Table 1. Retrievals at the lidar wavelength of 355 and 532 nm have been compared to the real part of ACRI obtained from AERONET database (Fig. 8).  $n_r$  does not significantly vary with the wavelength according to Table 2, where real parts have been calculated for the three wavelengths of the nephelometer :

#### 4. Restitution de l'indice complexe de réfraction

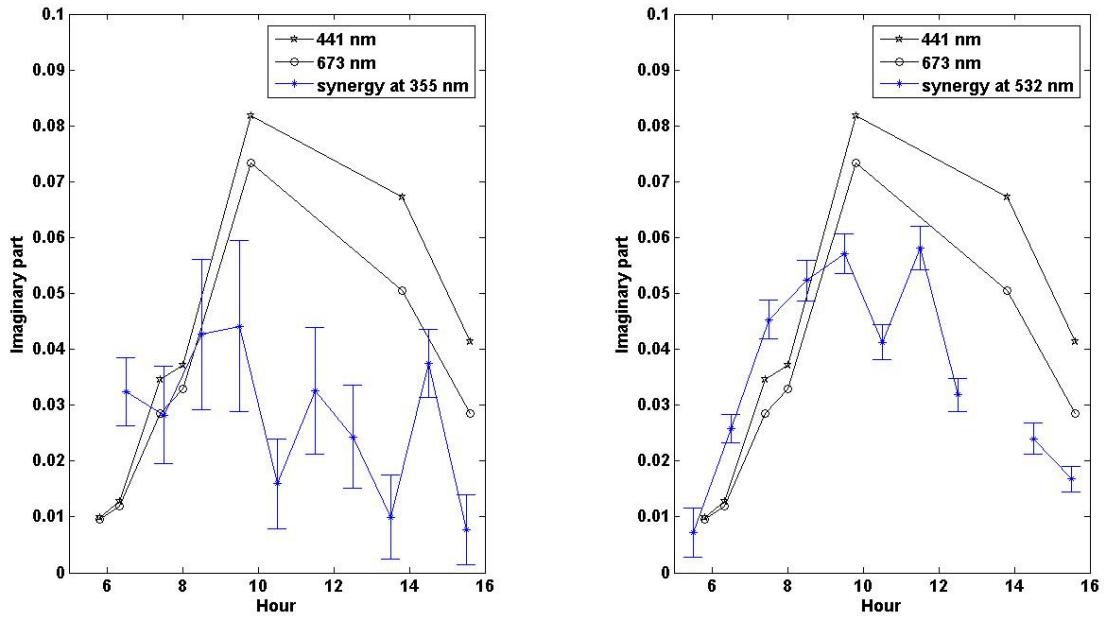


Figure 10: Daytime evolution of  $n_i$  retrieved from the synergy between lidar, sun photometer and in-situ instruments at 355 nm (left) and 532 nm (right) and from AERONET data (channels 441 nm and 673 nm). Vertical bars are the standard deviation on hourly averaged data.

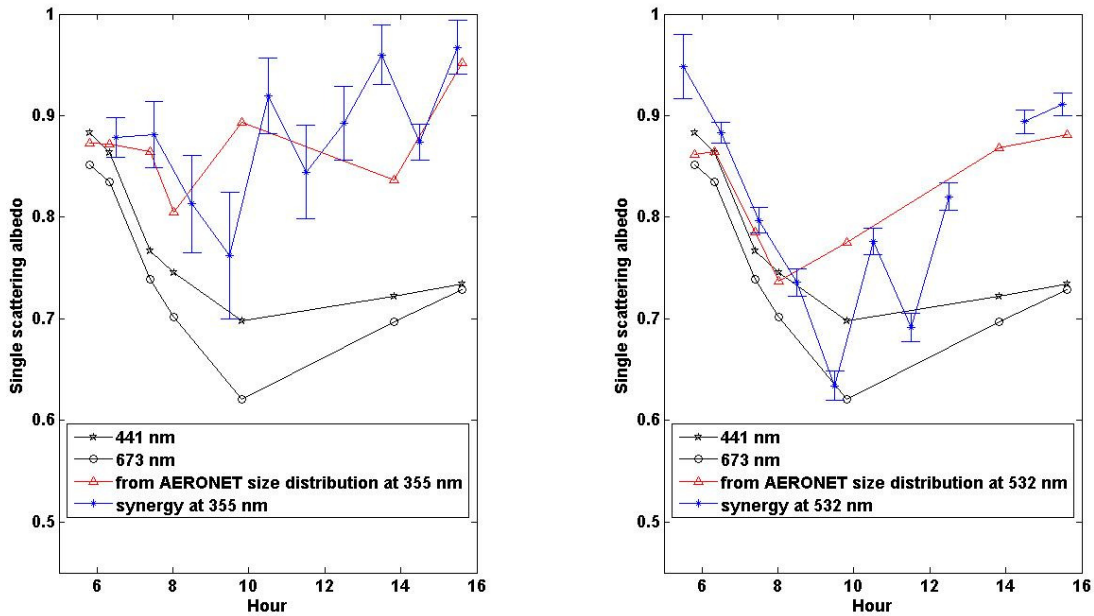


Figure 11: Daytime evolution of single-scattering albedo on May 18 retrieved from the synergy between lidar and sun photometer at 355 nm (left) and 532 nm (right) and from AERONET data (channels 441 nm and 673 nm) using Mie calculation based on AERONET size distribution and complex refractive index given in Table 1. Vertical bars are the standard deviation on hourly averaged data.

450, 550 and 700 nm for different periods.  $n_r$  values provided by AERONET are markedly lower ( $<1.43$ ) than our results, and depart farther from data in the reported literature (1.5 – 1.6). In addition, a higher value for the real part is more common in the

previous literature for ambient soot, a crucial component of urban aerosols influencing the real part of the total refractive index: a value of 1.75 is reported by d'Almeida et al. (1991) and 1.95 by Ackerman and Toon (1981) and Faxvog and Roessler (1978). The discrepancy between our result and that of

AERONET is important before 9 UTC and after 14 UTC. The discrepancy is larger for the imaginary part (Fig. 10) in the same temporal period than for the real part. Nevertheless, the assessments at the lidar wavelength of 532 nm seem to be in a better agreement, with close average values in the visible spectral range (Table 1). The previous difference observed comparing to AERONET data may be due to the fact that AERONET retrieval algorithm characterizes the column aerosol properties using a fixed effective ACRI (Dubovik et al., 2002), i.e. the refractive index that would provide the same radiance on the basis of particle size distribution for homogeneous, spherical aerosols. Obviously, the ACRI derived from AERONET are averaged through PBL and are therefore lower than ACRI retrieved from in situ measurements that deal with ground level measurements. This effective complex index of refraction does not refer to any specific aerosol type but is suitable to quantify the composite radiative properties of all aerosols in an atmospheric column. Aerosols in urban areas are however complex and are generally a mixture of several chemical components including organic carbon, soot, water soluble, dust and sea salt (e.g. Higurashi and Nakajima, 2002). Depending on the chemical compositions of aerosols, the ACRI is highly variable (d'Almeida et al., 1991). The accuracy of AERONET is, moreover, not guaranteed in this

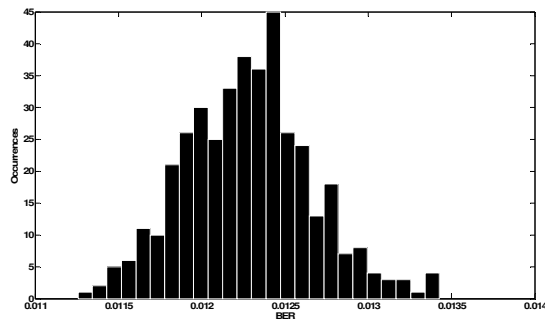


Figure 12: Histogram of the aerosol backscatter-to-extinction ratio (BER) retrieved from a Monte-Carlo method at 532 nm for the mean lidar profile on May 18 between 12 and 13 UTC.

case since optical thicknesses are too low; version 2 derived inversion data need to be processed with a modified algorithm. In addition, ACRI determined in this study are coherent to those retrieved by other authors. For instance, Kent et al. (1983) concluded  $1.60-0.15i$  for urban aerosols. Most traditional studies based on bulk chemical analyses turned out to be reasonable approaches for approximation of the real part of the particle refractive index ( $1.5 - 1.6$ ), but large differences in reported imaginary parts, e.g. from 0.0007 to 0.0015 for desert dust and oceanic aerosols, exist even for the same type of aerosol (d'Almeida, 1987; Sokolik et al., 1993; Kaufman et al.,

2001; Wang et al., 2003). The corresponding values for calculation of the imaginary part are not as well known as their real counterparts. On the other hand, comparison with imaginary parts introduced in models may be ambiguous since the measured values depart farther from calculated values if the chemical composition consists of mixtures that are internal rather than external (Liou et al. 1993). A good agreement is also found with Ebert et al. (2004). Thanks to his chemical analyses he found that urban influenced air masses are characterized by high real ( $1.60-1.73$ ) and imaginary parts ( $0.034-0.086$ ) of the total ACRI. Ebert et al. (2004) suggested that high real parts of polluted air masses are predominantly caused by the high abundance of metal oxide/hydroxide particles, the high imaginary parts by high abundances of soot.

AERONET single-scattering albedo around 0.75 is low compared with other results (Kilsby and Smith, 1987; Moores, 1982; Kitchen and Squires, 1984): their results were over 0.8. However a Mie computation using the ACRI retrieved from this work on the ground level and AERONET number size distribution (Fig. 11) gives a single-scattering albedo coherent with our value determined on the ground ( $0.80 - 0.88$ ). The ranges found in this present study with their relative errors therefore include the values deduced from AERONET size distribution at 355 and 532 nm. The agreement between our result on single-scattering albedo and the AERONET retrieval is of course better for the lidar visible wavelength of 532 nm. Note that for the assessment of the optical thickness at 355 nm we have supposed that the Angström exponent is constant between the visible domain and this wavelength. This may affect our result because Mie calculation shows a value of ~25% less between the wavelength couple of (441, 673) and (355, 532) nm using the aerosol model retrieved at the ground level. Then, the ACRI at 355 nm may be underestimated. Mallet et al. (2003) found  $0.85 \pm 0.5$  in South of France during Escompte campaign, Bergin et al. (2001) reported 0.81 on Beijing. Our results are also in very good agreement with Baumgardner et al. (2000) who carried out a recent study in Mexico-City using nephelometer and aethalometer indicating a value between 0.8 and 0.88. During the ESQUIF program in July 2000, Chazette et al. (2005b) found a single scattering albedo at 550 nm exhibiting a mean value ranging from 0.85 to 0.92. This value was close to the mean AERONET value of  $0.87 \pm 0.068$ .

Following the work of Chazette et al. (2005a), we have also used the synergy between in situ and lidar/sunphotometer measurements in the framework of the Pollution dans les Vallées Alpines (POVA) experiment that took place in the alpine valleys of Chamonix in summer 2003. The same in situ and remote sensing measurements were performed during this campaign. The main aerosol sources are similar as Paris traffic

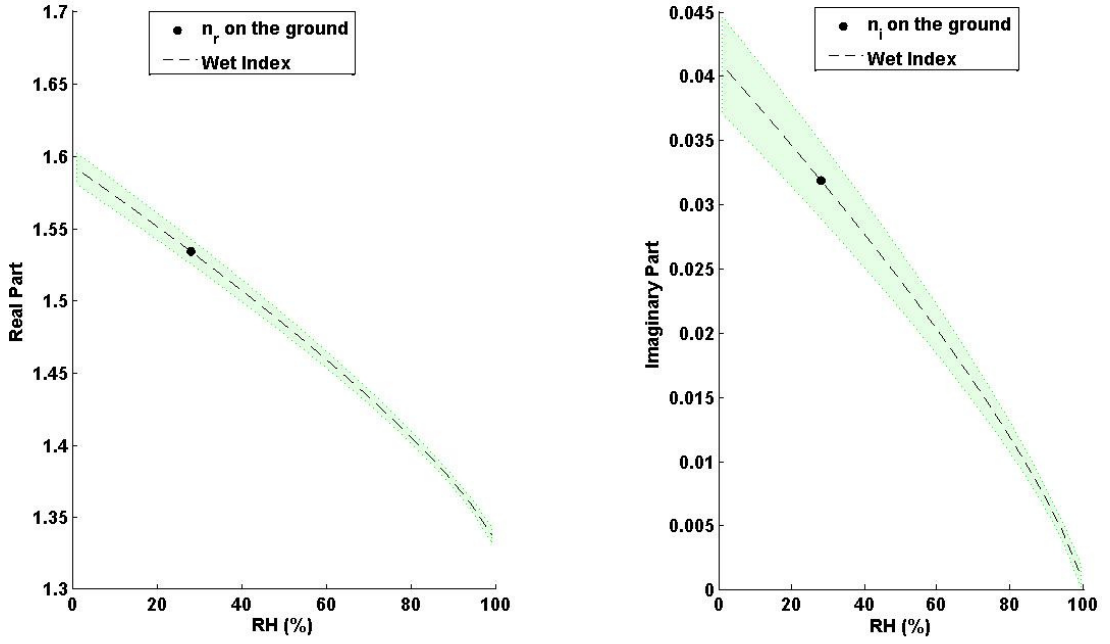


Figure 13: Evolution of both the real and the imaginary part of ACRI at 532 nm as functions of the relative humidity (RH) based on observation performed between 12 and 13 UTC on May 18. The dashed line represents the Hänel parametrisation curve and the filled circle shows the value retrieved on the surface level. The shaded area corresponds to the uncertainties linked to the error on ground computation and on RH.

ones. Calculations have given  $1.48 \pm 0.05$  and  $0.042 \pm 0.01$  for the real and the imaginary parts of the aerosol complex refractive index, respectively. The single scattering albedo has been found between 0.75 and 0.85. These findings are consistent with carbonaceous (soot) components in the aerosol which is a very strong absorber of solar radiation, arising from vehicle exhausts due to the heavy traffic around the city.

### 5. Sensitivity study

The uncertainties on both the ACRI and the single-scattering albedo are mainly due to those on both BER and on scattering cross-section. The relative uncertainty on the scattering cross-section depends on the statistical fluctuation of number size distribution and scattering coefficient measured by the nephelometer. It has been found to be close to 10%.

The uncertainty on BER retrieval has been characterized by the resulting bias and standard deviations on both the lidar-retrieved extinction coefficient and the sun photometer optical thickness. Errors related to lidar signal are negligible versus other errors because about 20000 profiles are averaged during an hour. The molecular model has been considered as inducing a relative uncertainty of 2% on the molecular backscatter coefficient. The bias and the standard deviations on the BER have been calculated using a Monte Carlo procedure illustrated in Fig. 4 as in the work of Chazette et al. (2002). They have been obtained

from 400 random realizations for each error source, which thus ensures a normal distribution around the mean value. The uncertainty  $\sigma(\tau)$  on the reference optical thickness value  $\tau$  at wavelength  $\lambda$  has been calculated using the following equation:

$$\sigma(\tau) = \tau \cdot \left( \left( \frac{\sigma(\tau_1)}{\tau_1} \cdot \left( 1 + \frac{\ln\left(\frac{\lambda_1}{\lambda}\right)}{\ln\left(\frac{\lambda_2}{\lambda_1}\right)} \right)^2 + \left( \frac{\sigma(\tau_2)}{\tau_2} \cdot \frac{\ln\left(\frac{\lambda_1}{\lambda}\right)}{\ln\left(\frac{\lambda_2}{\lambda_1}\right)} \right)^2 \right)^{1/2} \right) \quad (2)$$

where  $\sigma(\tau_i)$  ( $i=1;2$ ) is the uncertainty on AERONET optical thickness  $\tau_i$  at wavelength  $\lambda_i$  (440 or 675 nm). This equation can be written since error sources are independent thanks to the different filter channels of the sun photometer. The AERONET database gives a maximal absolute uncertainty of 0.02 for the optical thickness and for  $n$  independent sunphotometer measurements the uncertainty is then given by

$$\sigma(\tau_i) = \frac{0.02}{\sqrt{n}}. \quad (3)$$

The resulting histogram of the 400 retrieved values of BER is given on Fig. 12 for the LESAA mean profiles between 12 and 13 UTC (Fig. 1). This procedure gives similar results for the

other periods and leads to a standard deviation of BER as equal to  $3 \cdot 10^{-4} \text{ sr}^{-1}$  ( $1.2 \cdot 10^{-3} \text{ sr}^{-1}$ ), at 532 (355) nm with a positive bias less than  $3 \cdot 10^{-5}$  ( $2 \cdot 10^{-4}$ )  $\text{sr}^{-1}$ .

The resulting total uncertainties on  $n_r$ ,  $n_i$  and  $\omega_0$  have been given in Table 1. As an illustration, the shaded area on Fig. 9 represents the calculated uncertainty  $n_i$  as a function of the uncertainty on BER. Following the uncertainty study, the diurnal variability of the previous retrievals appears to be significant and may be due to the evolution of the aerosol chemistry and size distribution during the day.

### 6. Water vapor effect

#### 6.1 Parameterisation

The increase in light-scattering by aerosols with RH at a specific wavelength has been considered to be an important parameter to estimate aerosol radiative forcing (Charlson et al., 1992; IPCC, 2001) and to understand the cause of visibility degradation due to aerosols (White and Roberts, 1977; Tang et al., 1981; Malm et al., 2003). As the relative humidity increases, condensation of water vapor may take place on the aerosol scatterers depending on their chemical composition (e.g. Tang and Munkelwitz, 1993). This phenomenon leads to an increase of the size of the particles (hygroscopic growth of aerosols). Apart from the change in size, hygroscopic aerosols experience a change in their

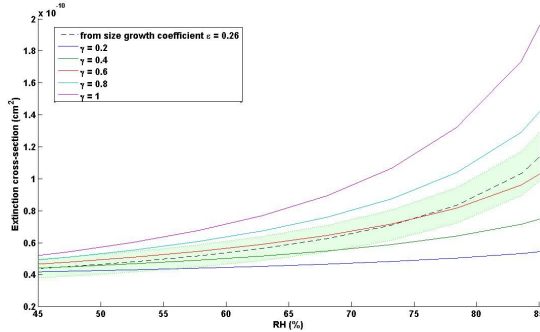


Figure 14: Aerosol extinction cross section against the relative humidity (RH) based on observation performed between 12 and 13 UTC on May 18. Colored solid lines represent the Hänel parameterisation curves with different extinction growth coefficients  $\gamma$ , whereas the dashed line shows the evolution of the cross section as calculated with Mie model and a size growth coefficient of 0.26. The shaded area corresponds to the uncertainties.

refractive index and in several key optical properties (scattering and absorption coefficients, single scattering albedo, asymmetry parameter, and aerosol optical depth) that are relevant to aerosol

radiative forcing estimates. When using lidar to remotely sense properties in the boundary layer, an accurate description of this effect becomes important where RH experiences a significant diurnal cycle. On a short time scale, significant changes in the lidar backscattering can be observed during the morning or evening transitions due to rapid changes in the boundary layer RH. This effect can lead to ambiguous interpretation of lidar backscatter data. An increase in static stability (less turbulent mixing) in the lower atmosphere or a modification of the emissions leading to changes in aerosol concentration can not be differentiated from an increase in the measured backscatter coefficient due to RH effect without an appropriate knowledge of the hygroscopic growth of the aerosols present over the lidar station.

To model the effect of water vapor on hydrophilic aerosols, we used the following relationships set up by Hänel (1976), describing aerosol growth and giving particle radius and refractive index for wet particles:

$$r_w = r \cdot (1 - RH)^{-\epsilon} \quad (4)$$

$$n_w = n_{H_2O} + (n - n_{H_2O}) \cdot \left( \frac{r_w}{r} \right)^{-3} \quad (5)$$

The suffix  $W$  refers to wet conditions and RH is the relative humidity.  $r$  and  $n$  are the radius and the refractive index of aerosol particles, respectively, and  $n_{H_2O}$  is the refractive index of pure water. The coefficient  $\epsilon$  depends on the considered type of aerosol and is taken as 0.26 according to Randriamiarisoa et al. (2006) over Paris. Fig. 13 gives the evolution of  $n_r$  and  $n_i$  as a function of RH starting from our ground computation at RH = 28%. Given that the real part of the refractive index of pure water (1.33) is lower than the one associated to dry particles or measured on the ground and its imaginary part is almost zero ( $10^{-8}$ ),  $n_r$  and  $n_i$  tend to decrease as the water uptake by the particles gets more and more important. Hänel (1976) also proposed a parametrisation of the scattering growth factor. It has been used by many investigators (Covert et al., 1972; Boucher and Anderson, 1995; Ross and Hobbs, 1998; Kotchenruther et al., 1999; Gasso et al., 2000; Randriamiarisoa et al., 2006) and is generally applied to the increasing part of the hysteresis cycle:

$$\frac{\sigma_{scatt}(RH)}{\sigma_{scatt}(RH_{ref})} = \left( \frac{1 - RH}{1 - RH_{ref}} \right)^{-\gamma} \quad (6)$$

where  $\sigma_{scatt}$  is the scattering cross-section and  $\gamma$  is the scattering growth coefficient. Gasso et al. (2000) reported  $\gamma$

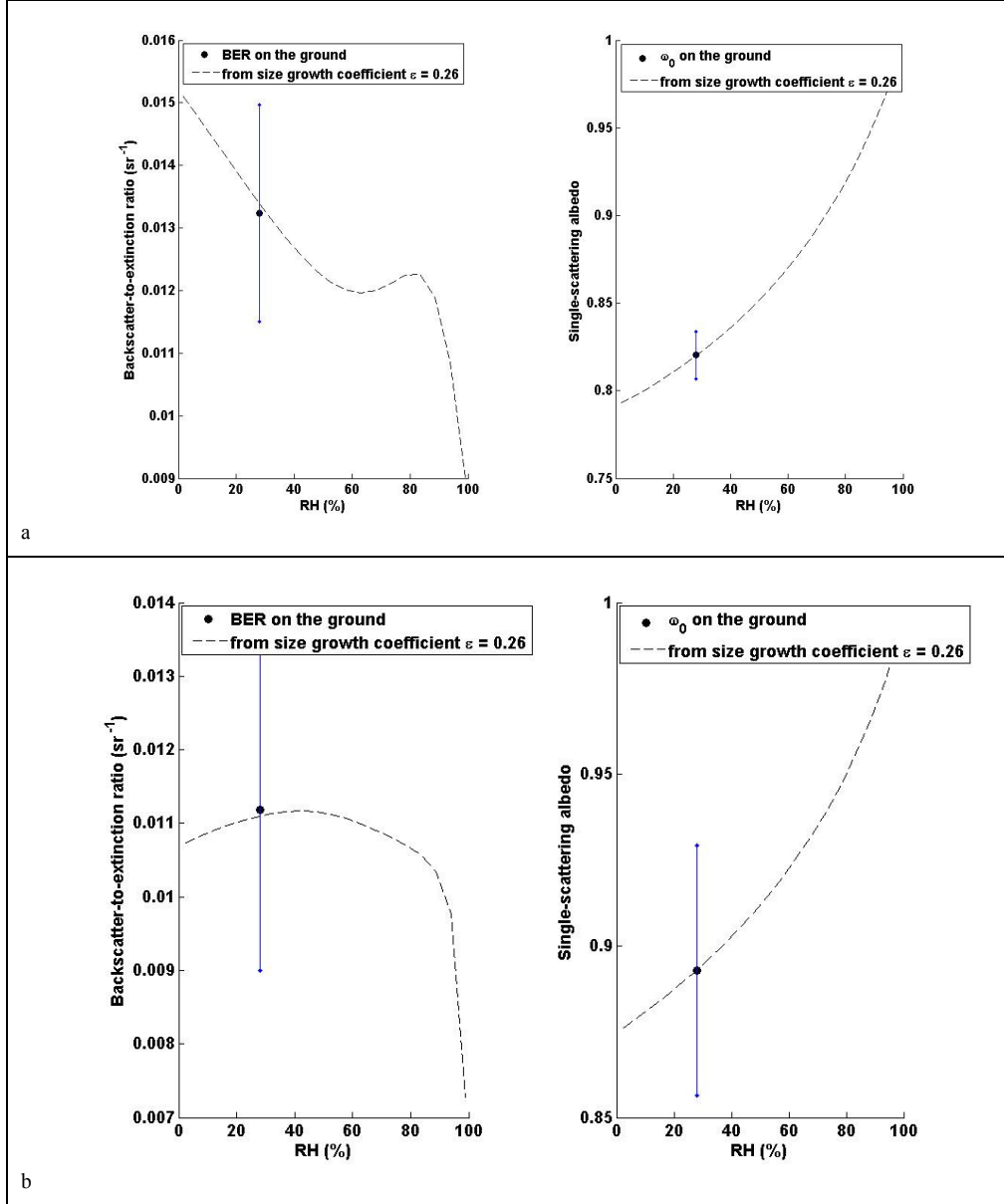


Figure 15: Evolution of BER (left) and  $\omega_0$  (right) with increasing relative humidity (RH) at 532 nm (a) and 355 nm (b). The dashed line represents Mie model computation with aerosol ground size distribution, complex refractive index and a size growth coefficient of 0.26. The filled circle shows the value retrieved on the surface for measurements obtained between 12 and 13 UTC on May 18. The vertical bars represent the standard deviation associated with surface measurements in the same period.

between 0.27 and 0.6, Randriamiarisoa et al. (2006) found values between 0.47 and 1.35 for urban aerosols over Paris. In this study, an equivalent parameterisation focusing on extinction cross-sections has been used with an appropriate coefficient  $\gamma_e$ . A comparison between a computation of the previous equation and a Mie model using size distribution and refractive index with the associated size growth coefficient  $\mathcal{E} = 0.26$  enabled to retrieve  $\gamma_e$ . A Monte-Carlo method has been applied to assess the uncertainties considering the

variations of 3 parameters: size distribution, complex refractive index and humidity rate whose absolute error is about 0.5%. As shown in Fig. 14, the most convenient value for  $\gamma_e$  is  $0.55 \pm 0.05$  in the RH range [50% - 85%]. This result is in agreement with values reported in the literature. Graphs of BER and  $\omega_0$  are also given in Fig. 15. These results are in agreement with experimental results obtained on the ground with RH=28% and presented in Fig. 6. Consequently,

## 4. Restitution de l'indice complexe de réfraction

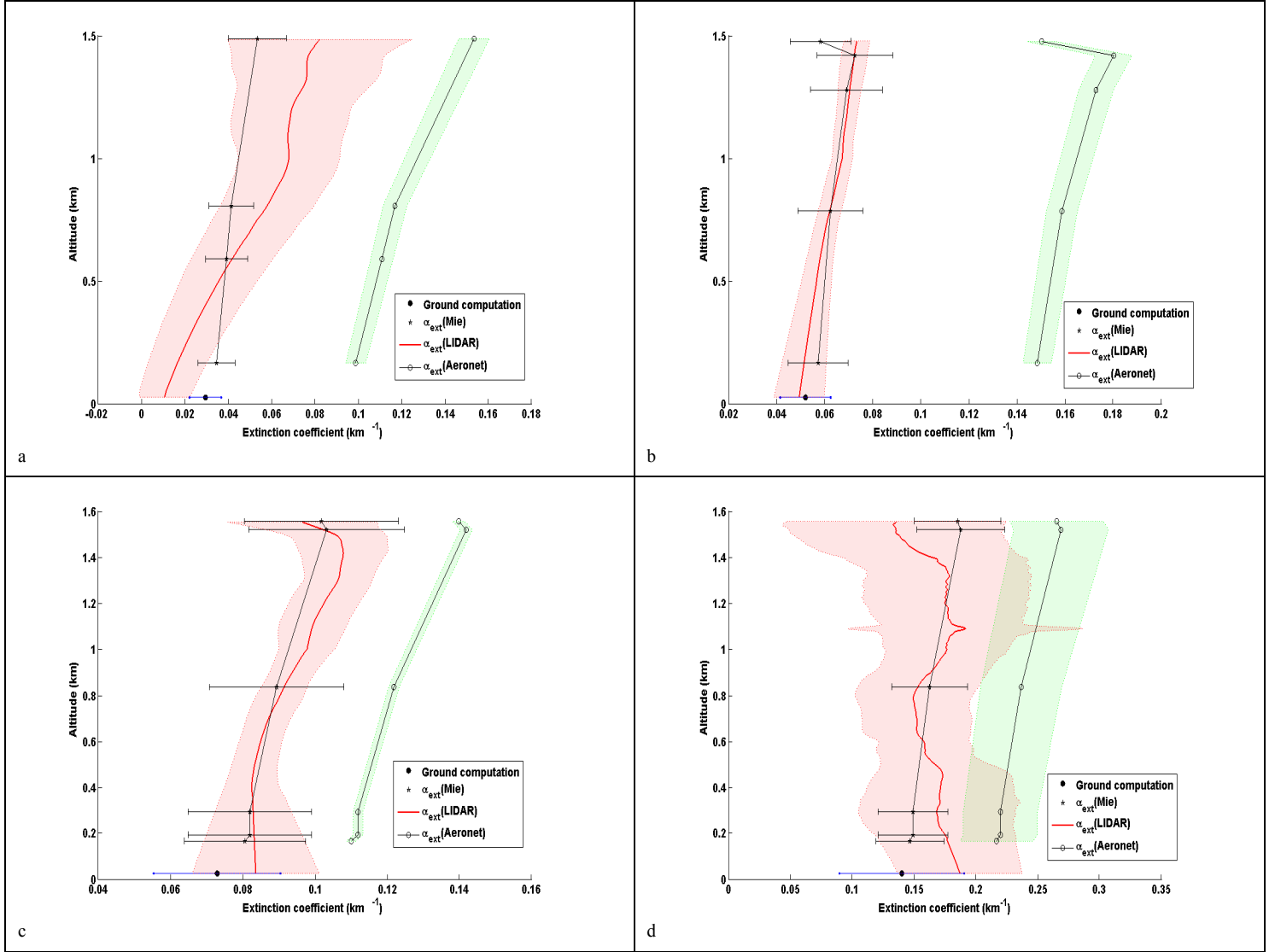


Figure 16: Profiles of the aerosol extinction coefficient obtained between 12 and 13 UTC by lidar (red), ground size distribution (black) and Aeronet size distribution (green). Colored solid lines represent the mean profile obtained during the period and shaded areas or horizontal lines show their respective standard deviation. The mean extinction value retrieved on the ground level is given with a circle and its standard deviation with a horizontal bar. From left to right and top to bottom : 10 May at 532 nm (a), 12 May at 532 nm (b), 18 May at 532 nm (c), 22 May at 532 nm (d).

significant variations in the lidar backscatter signal are expected when the hygroscopic growth of aerosols is pronounced.

### 6.2 Application to the PBL

Thanks to radiosounding data obtained in Trappes (48°46' N, 2° E), we try to understand to what extent relative humidity (RH) might influence the lidar-retrieved aerosol extinction coefficient. Assuming a vertically homogeneous aerosol composition, optical properties obtained on May 18 have been used to simulate vertical extinction profiles for days where lidar profiles were simultaneously available (Fig. 16 and 17). The decreasing values of  $n_r$  and  $n_i$  with increasing RH would

suggest a decrease in aerosol backscattering and absorption. But the size dependence of RH dominates, leading to an increase in backscattering as RH increases: variations in refractive index are not large enough to counteract the  $r^2$  dependence of the variation in particles's cross-section due to size increase. Uncertainties on the simulated extinction profiles have been determined thanks to the corresponding uncertainties on  $\gamma_e$  (Monte-Carlo approach in Sect. 6.1) and are represented by horizontal bars on Fig. 16 and 17. These bars are included in shaded areas standing for the variability of lidar-derived extinction profiles averaged over the corresponding day. A good agreement is found between lidar profiles and extinction profiles calculated with  $\gamma_e$  coefficient. It is thus noteworthy

#### 4. Restitution de l'indice complexe de réfraction

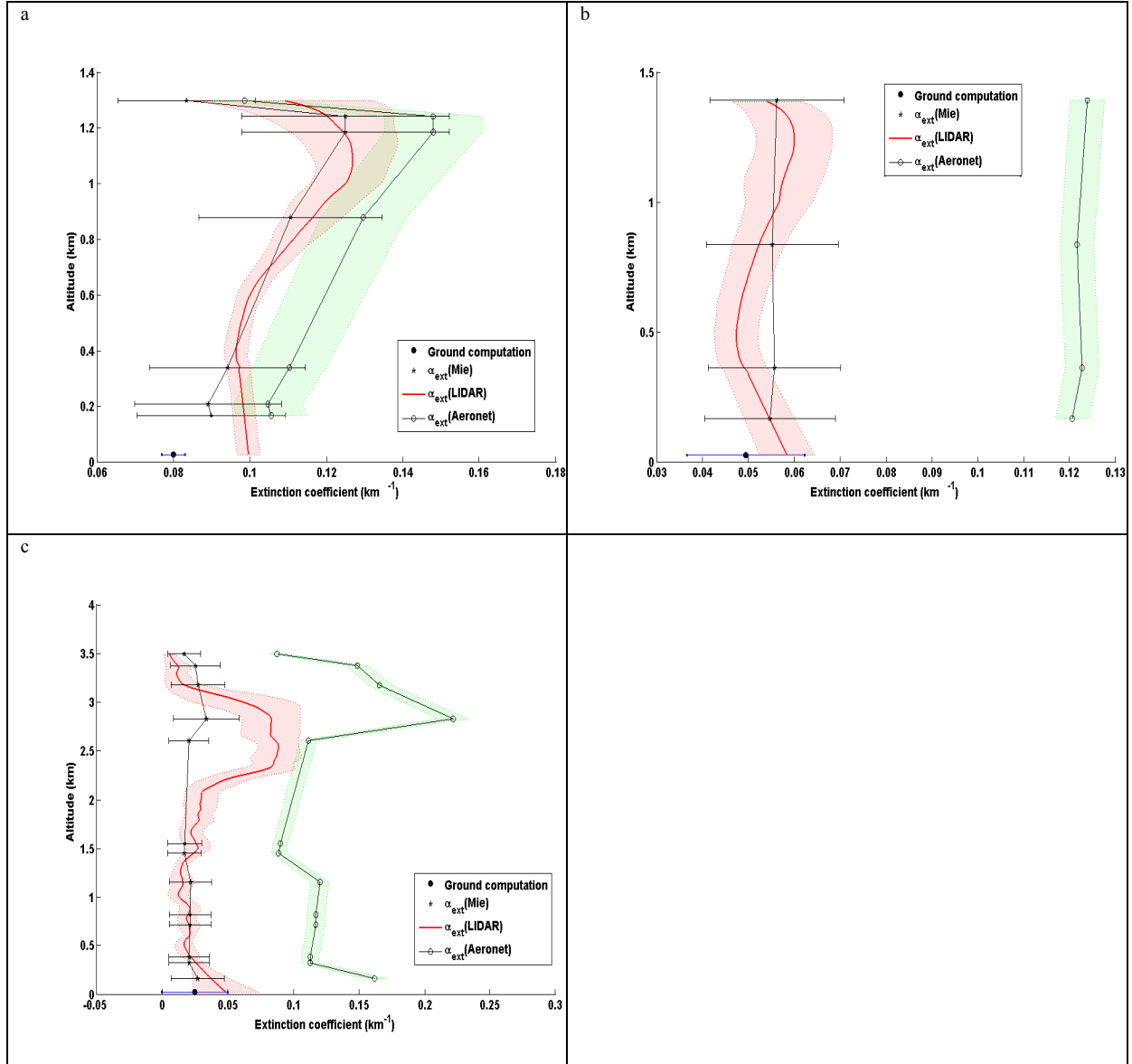


Figure 17: Profiles of the aerosol extinction coefficient at 532 nm obtained between 12 and 13 UTC by lidar (red), ground size distribution (black) and Aeronet size distribution (green) in the case where divergence were observed. Colour solid lines represent the mean profile obtained during the period and shaded areas or horizontal lines show their respective standard deviation. The mean extinction value retrieved on the ground level is given with a circle and its standard deviation with a horizontal bar. From top to bottom: 25 May (a), 26 May (b), 27 May (c).

that the hypothesis linking the vertical variability of extinction to RH in the atmospheric column is quite reliable. According to Fig. 16, modifications in the aerosol extinction coefficient are thus mainly due to RH effect rather than changes in aerosol concentration. On the 18<sup>th</sup> May (Fig. 16c), the constant BER hypothesis we made is justified because RH does not reach the deliquescence threshold in the column ( $RH < 60\%$ ). However, the shape of aerosol extinction profiles is not always perfectly reproduced despite the satisfying overlapping between error bars and the lidar profile temporal variability. Hence, slight modifications in lidar profiles on the 26<sup>th</sup> May (Fig. 17b) cannot

be precisely observed when the relative humidity is about constant in the PBL. The strongest divergence is observed on the 27<sup>th</sup> May (Fig. 17c) when a dust episode occurred. The accordance between profiles is fine except in the dust layer between 2.3 km and 3.2 km where the constant BER assumption in the atmospheric column is no longer valid. Variations in the atmospheric column for 27 May can be mainly ascribed to modifications in aerosol properties and concentration owing to air masses advection carrying dusts. The most important error bars observed on Fig 17a are mainly due to the high variability of aerosol number concentration for the



25 May. An altitude-dependent BER would have been particularly appreciated in this study but the lack of a Raman lidar leads us to suppose a constant BER in the atmospheric column. This hypothesis is not however to discard since simulated extinction profiles are in agreement with lidar-derived extinction coefficient profiles. Flamant et al (2000) assessed uncertainties in the BER profile on the error in the extinction profile. They derived the particulate BER from modal diameters and refractive indices in literature introducing them into a Mie code. They showed that errors on lidar-derived extinction coefficient values throughout the lower troposphere are mainly due to the error on the reference extinction coefficient (about 20%) rather than the error on BER profile (about 5% in the plume). Furthermore, BER does not rapidly evolve with increasing RH. Calculations of the relative variation BER as a function of RH have been performed at 355 nm for RH comprised between 30% and 80%. In this range, BER shows variations lower than 10%.

On the other hand the same method has been applied with AERONET-retrieved aerosol size distribution associated with  $\varepsilon = 0.26$ . Similar extinction profiles have been computed according to RH profile and starting from a relative humidity equivalent value  $RH_{eq}$  given by

$$RH_{eq} = \frac{\int_0^{PBL\ top} RH(z) \cdot \alpha(z) dz}{\int_0^{PBL\ top} \alpha(z) dz}, \quad (7)$$

which AERONET ACRI and size distribution have been determined with.

The profiles calculated from AERONET data cannot converge towards lidar-derived vertical extinction and the corresponding uncertainties lie apart from lidar variability. A likely influence of size distribution on scattering cross-sections has to be investigated to explain such divergent results with AERONET data.

Hence, we performed a sensitivity analysis on AERONET size distribution so as to compare and discuss our results. Starting from volume concentration values in each size bin, we have

converted the size distribution  $\frac{dV}{d \ln r}$  given by Almuqantar

inversion in log-normal modes leading to the determination of number size distribution parameters (Seinfeld and Pandis, 1998). Large differences are observed between size distributions obtained on the ground level and from AERONET retrieval. Such discrepancies on size distribution yield divergent optical efficiencies. On the ground level, the accumulation

mode centered at 0.1  $\mu\text{m}$ , representing only 8% of the total number of particles, is responsible for the extinction efficiency by 90%. The accumulation mode with a modal radius close to 0.1  $\mu\text{m}$  is highly predominant with Almuqantar retrieval (80% of optical efficiency), which does not seem able to manage the detection of very small particles with a radius lower than 50 nm. Besides almost all aerosols measured in the atmospheric column seem to be shift towards the accumulation mode: this mode contains indeed 98% of the total number of particles. Conversely, no coarse mode was observed from in situ measurements at the ground level. Coarse mode in AERONET case is notwithstanding responsible for 20% of the aerosol extinction. Quinn and Coffman (1998) underlined that the sampling of coarse aerosols is often a limitation in computing scattering from in situ data. As a consequence, AERONET size distribution is much more optically efficient: a factor 5 is observed on scattering cross-sections. It suggests divergent results for the previous comparisons based on lidar aerosol extinction profile retrieval, which are more favourable to the aerosol size distribution retrieved from in situ measurements.

We should notice that the expected accuracy for  $\frac{dV}{d \ln r}$  is

15-25% for 0.1  $\mu\text{m} < r < 7 \mu\text{m}$  and 25-100% for  $r < 0.1 \mu\text{m}$  and  $r > 7 \mu\text{m}$  (Dubovik et al., 2000) and that the presence of low optical thicknesses does not guarantee accurate Almuqantar retrievals (Sect. 2.2). Note that size distribution has a huge impact on vertical extinction profiles but only slight influence on optical ratios BER or  $\omega_0$  (Fig. 6 and 11).

## 7. Conclusion

Ground based in situ and active/passive remote sensor measurements were performed in Paris to study the anthropogenic aerosols in such a megacity. We have presented an assessment of the aerosol complex refractive index at the ground level using the synergy between lidar, sunphotometer and in situ measurements. Our study based on the LISAIR campaign reveals the important climatic impact related to a significant imaginary part of  $\sim 0.028$  (0.044) at 355 (532) nm and thus to a single-scattering albedo lower than 0.9. This lead to heating rates close to 1K/day in Paris intramuros PBL (evaluation with STREAMER (Key, 2001) already performed during INDOEX (Leon et al., 2002) and for spaceborne active/passive coupling on dusts (Berthier et al., 2006)) and thus to a change in dynamical equilibrium conditions of the urban boundary layer which are bound to influence pollutant dispersion. This new approach using lidar measurements has appeared to be a relevant tool to assess aerosol optical properties in urban areas and offers new perspectives for

aerosol pollution studies above megacities. The knowledge of the aerosols properties in the urban PBL will be very useful to best understand the climate variability in the big cities due to their pollutant emissions.

### **8. Acknowledgments**

This LISAIR program was funded by the city hall of Paris and the Commissariat à l'Energie Atomique (CEA). Part of this research was also funded by the French PRIMEQUAL-2 program. The authors would like to thank Konstantina Oikonomou and Jean Sciare for their help in the aerosol chemistry analyses.

## 4.6 Conclusions

---

La complémentarité entre les mesures in situ et les observations de télédétection active et passive a permis de caractériser complètement l'aérosol de pollution parisien à partir de ses propriétés structurales, microphysiques et optiques. Elle a permis de répondre à un des objectifs méthodologiques de cette thèse : la détermination de l'ACRI grâce à la mesure optique. La restitution de l'ACRI a suivi une procédure en deux étapes. Dans le cas des aérosols observés en région parisienne, la section efficace de diffusion est en effet quasi-indépendante de la partie imaginaire de l'indice de réfraction. Cela permet d'envisager une obtention directe de la partie réelle en comparant la section efficace de diffusion mesurée par l'ensemble formé par le néphélomètre et le compteur de particules à celle simulée par un code de Mie. C'est dans une seconde étape que l'on restitue alors la partie imaginaire de l'indice, qui demeure la seule inconnue devant conduire (par la théorie de Mie) au BER obtenu par le couplage lidar / photomètre en ciel clair. Un BER de 71-83 sr dans le domaine UV-visible, comme celui restitué dans cette étude en région parisienne, révèle la présence d'une distribution en taille bimodale présentant un mode fin prédominant, principalement lié aux sources de trafic automobile. Il correspond probablement à des aérosols sphériques (qui dépolarisent peu) constitués d'un noyau de suie enrobé d'éléments organiques ou hydrosolubles non absorbants (Randiamiarisoa et al., 2006). L'existence de deux lidars fonctionnant en continu à deux longueurs d'onde distinctes a permis d'estimer les variations journalières de l'indice par cette méthode à 355 et 532 nm. L'albédo de simple diffusion qui en a été déduit est compris entre 0.80 et 0.88.

Notre étude a également souligné l'importance de la mesure de la distribution en taille. Elle a mis en évidence d'importants écarts entre les distributions granulométriques inversées en télédétection passive et celles mesurées au sol. Les premières ne sont pas sensibles aux très petits aérosols et le nombre total de particules, évalué à partir de distributions volumiques, est souvent sous-estimé ; les granulométries observées en surface sont en revanche inefficaces dans l'échantillonnage des particules du mode grossier. La granulométrie constitue, parmi les propriétés de l'aérosol dans le domaine UV-visible, le paramètre dont l'influence sur les propriétés optiques intégrées est la plus grande. Elle joue donc en particulier un rôle prépondérant dans la restitution des ACRI. En revanche, son influence sur la détermination de  $\omega_h$  n'est pas significative pour les aérosols urbains. En passant par exemple d'une distribution monomodale centrée à 0.1  $\mu\text{m}$  (mode d'accumulation) à une distribution dont le rayon modal est décalé à 0.2  $\mu\text{m}$ , les variations observées sur  $\omega_h$  sont de l'ordre de 7 % seulement. Les phénomènes de diffusion étant en effet dominants par rapport à l'absorption, ce sont surtout les modifications des coefficients d'absorption, moins sensibles à la contribution de la taille, qui vont causer les variations de  $\omega_h$  (Fig. 4.1).

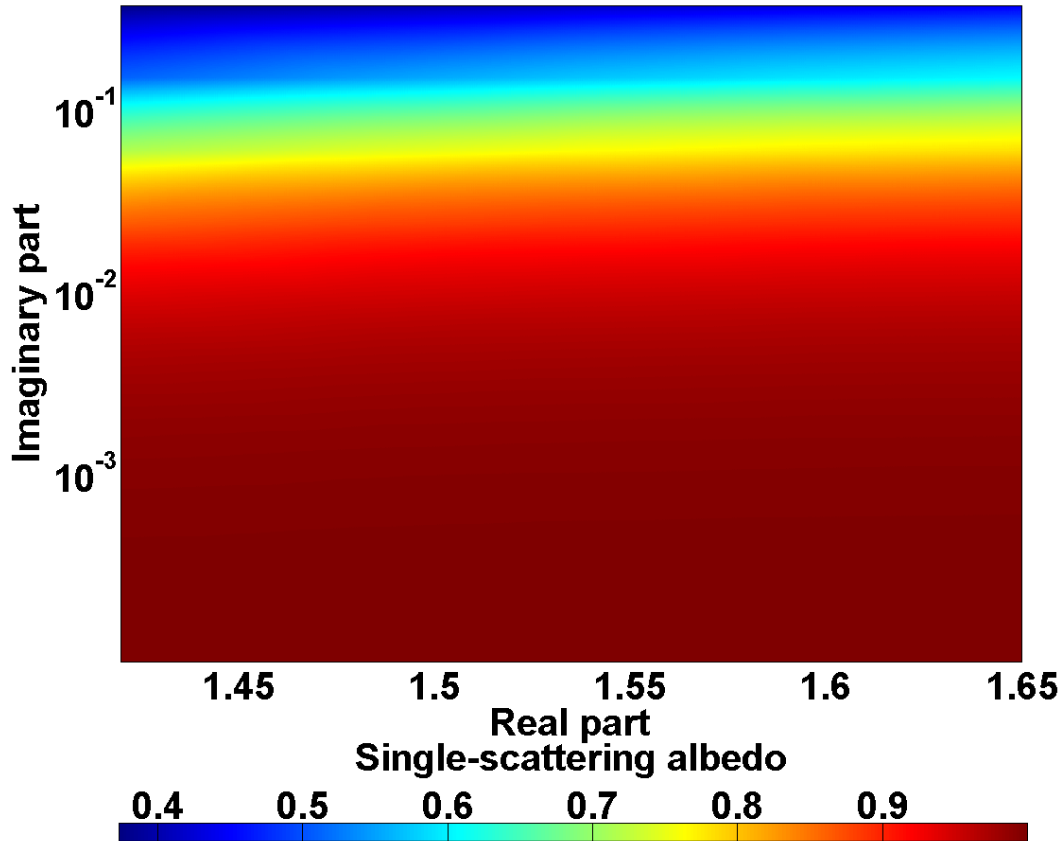


Fig. 4.1 : Albédos de simple diffusion calculés pour différents couples de parties réelles et imaginaires de l'ACRI à 355 nm en utilisant la distribution en taille moyenne mesurée durant la campagne LISAIR.

L'albédo de simple diffusion, pour sa faible sensibilité à la partie réelle et la granulométrie, n'est donc pas nécessairement un très bon indicateur pour caractériser l'aérosol. Pour les mêmes raisons, le BER, produit de  $\omega_0$  par la fonction de phase en rétrodiffusion normalisée à  $4\pi$  (Eq. 3.48), n'est donc pas significativement affecté par la granulométrie, les différences de distribution en taille induisant essentiellement des écarts sur la partie avant de la fonction de phase de diffusion. C'est aussi la raison pour laquelle  $\omega_0$  ou le BER, indifféremment, permettent de contraindre précisément la détermination de la partie imaginaire de l'ACRI.

Les valeurs d'indice de réfraction obtenues par cette approche ne sont toutefois représentatives que de la couche de surface où sont réalisées les mesures in situ. Le BER étant en revanche déterminé par une mesure intégrée sur la verticale, il était important d'évaluer leur représentativité dans la colonne atmosphérique. L'extension des propriétés optiques et microphysiques de l'aérosol à l'ensemble de la couche limite a pu être effectuée sous l'hypothèse forte que les variations de celles-ci dans l'atmosphère n'étaient liées qu'à des modifications du taux d'humidité relative. L'augmentation de la diffusion de la lumière par les aérosols avec RH à une longueur d'onde spécifique est en effet un paramètre important pour estimer le forçage radiatif de l'aérosol et pour comprendre les raisons de la dégradation de visibilité due aux aérosols. Elle a été prise en compte par les lois de Hänel (1976). Cela a permis d'estimer des profils verticaux de coefficient d'extinction. Malgré des barres d'incertitude importantes, la méthode montre qu'elle fournit des résultats comparables à ceux obtenus directement par inversion des signaux lidar. Les limites de cette approche ont pu être observées dans les situations où la distribution verticale des aérosols urbains était hétérogène

dans la couche limite, mais surtout en présence de couches additionnelles en altitude, d'origines différentes, aux propriétés structurales et microphysiques différentes, et advectées à grande échelle (Sect. 3.3.9.4).

## 4.7 Etude complémentaire : pollution particulaire dans la colonne d'air parisienne

---

### 4.7.1 Exploitation des résultats de la synergie expérimentale pour la conversion optique-masse

Même si les éléments chimiques constitutifs de l'aérosol varient spatialement et temporellement, nous allons montrer que les coefficients d'extinction de la lumière sont bien corrélés avec les concentrations en masse des particules fines. On recherche alors le coefficient  $k$  vérifiant l'équation :

$$PM_{10}(t) = k \cdot \alpha_{ext,p}(\lambda, t) \quad (4.16)$$

quelque soit l'instant  $t$ . Par conséquent les variations temporelles de  $k$ , inverse de la section efficace spécifique d'extinction, doivent être faibles. On peut calculer  $k$  de manière théorique ( $k_{th}$ ) comme dans Raut et al. (2008) :

$$k_{th} = \frac{\sum_t \left( \int_{r_{min}}^{r_{max}} \sigma_{ext,p}(\lambda, r, t) \cdot \frac{dN}{dr}(t) \cdot dr \right) \cdot \left( \int_{r_{min}}^{r_{max}} \rho \cdot \frac{4}{3} \cdot \pi \cdot r^3 \cdot \frac{dN}{dr}(t) \cdot dr \right)}{\sum_t \left( \int_{r_{min}}^{r_{max}} \sigma_{ext,p}(\lambda, r, t) \cdot \frac{dN}{dr}(t) \cdot dr \right)^2} \quad (4.17)$$

$k$  est donc indépendant du temps mais peut dépendre de la composition de l'aérosol (donc de l'indice de réfraction équivalent) et de la densité. Une corrélation linéaire a été obtenue entre le coefficient de diffusion total de l'aérosol mesuré à 700 nm par le néphélomètre et la concentration massique ( $PM_{10}$ ) mesurée par le TEOM et est donnée sur la Fig. 4.2.

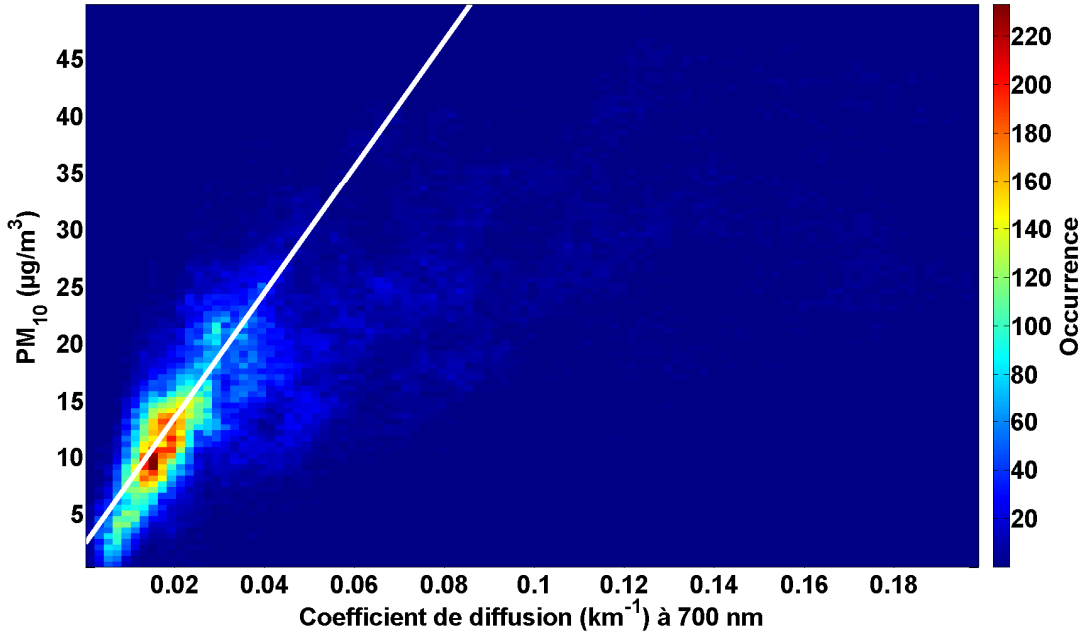


Fig. 4.2 : Histogramme bidimensionnel des valeurs de concentrations massiques du TEOM ( $PM_{10}$ ) et de coefficients de diffusion du néphélomètre à 700 nm.

La relation linéaire obtenue confirme l'hypothèse selon laquelle la nature chimique des aérosols n'a pas significativement changé au cours de la campagne de mesures. Or, pour une distribution en taille donnée, les différents constituants chimiques de l'aérosol ont des contributions massiques qui pourraient fluctuer, engendrant des variations de leurs contributions à la diffusion de la lumière. Mais la relation linéaire décrite par la Fig. 4.2 traduit le fait que de tels changements n'auraient pas altéré significativement, de manière statistique, la diffusion totale de la population des particules. On peut donc supposer que  $\sigma_{ext,p}$  et  $dN/dr$  ne varient pas trop dans le temps.  $\sigma_{ext,p}$  peut alors être calculée à partir de la connaissance a priori de la distribution en taille et de l'ACRI équivalent sous l'hypothèse de particules sphériques. On fait également l'hypothèse que la variation dans l'espace de ces grandeurs ( $\sigma_{ext,p}$  et  $dN/dr$ ) n'est pas trop importante, conformément aux résultats de la synergie décrite dans Raut and Chazette (2007). On peut alors écrire de manière plus simple la valeur de  $k$  ( $k_I$ ) via cette approche :

$$k_1 = \frac{1}{\langle \sigma_{ext,p}(\lambda) \rangle} \cdot \rho \cdot \frac{4}{3} \cdot \pi \cdot \overline{\langle r^3 \rangle} \quad (4.18)$$

où  $\langle \cdot \rangle$  désigne la moyenne temporelle, et  $\overline{\langle r^3 \rangle}$  est le rayon cubique moyen :

$$\overline{\langle r^3 \rangle} = \sum_c \left[ \frac{\langle N_n(c) \rangle}{4} \cdot \frac{(r_{max}^c)^4 - (r_{min}^c)^4}{r_{max}^c - r_{min}^c} \right] \quad (4.19)$$

en sommant sur les classes  $c$  de l'ELPI délimitées par  $r_{min}^c$  et  $r_{max}^c$ .

Un autre atout apporté par la méthode de fermeture de l'article de Raut and Chazette (2007) est de fournir un ACRI à peu près constant dans le domaine UV-visible (conformément aux résultats de Volz (1973)) qui permet d'obtenir des concentrations massiques à partir de mesures optiques à n'importe quelle longueur d'onde dans le domaine UV-visible. Toutefois, les relations précédentes (Eq. 4.17 et 4.18) dépendent fortement de la distribution en taille. La Fig. 4.2 permet pourtant d'envisager une relation plus directe entre optique et masse. La

relation biunivoque établie entre les mesures in situ du néphélomètre et du TEOM peut être étendue aux observations lidar exprimées en coefficient d'extinction sous la forme :

$$PM_{10}(z,t) = \underbrace{\frac{C_{o,m}}{\omega_0(\lambda=355nm)}}_{k=k_2} \cdot \left(\frac{355}{700}\right)^a \cdot \alpha_{ext,p}(\lambda=355nm, z, t) \quad (4.20)$$

$C_{o,m}$  désigne la pente de régression linéaire entre optique et masse établie en Fig. 4.2 à partir des mesures du coefficient de diffusion à 700 nm.  $a$  est le coefficient d'Angström pour la diffusion représenté sur la Fig. 2 de l'article de Raut and Chazette (2007).  $\omega_0$  a pu être déterminé lors de l'étude de fermeture sur les indices. Notons que la détermination de  $\omega_0$  par la connaissance de la granulométrie et de l'ACRI est plus fiable que celle consistant à utiliser les mesures des coefficients de diffusion et d'absorption. Des incertitudes importantes sont notamment observées dans les mesures d'absorption par l'aéthalomètre. Elles apparaissent lors de la conversion de la transmission lumineuse à travers le filtre en coefficient d'absorption (Raut and Chazette, 2008b). L'ensemble des paramètres utiles au calcul de  $k_1$  et  $k_2$  est reporté dans le Tableau 4.2.

Tableau 4.2 : Valeurs moyennes sur la campagne LISAIR des paramètres intervenant dans la conversion des mesures optiques en concentrations massiques.

$\rho$ (g.cm <sup>-3</sup> )	$\sigma_{ext,p}$ (cm <sup>2</sup> )	$r^3$ (μm <sup>3</sup> )	$k_1$ (μg.m <sup>-2</sup> )	$C_{o,m}$ (μg.m <sup>-2</sup> )	$\omega_0$	$a$	$k_2$ (μg.m <sup>-2</sup> )
1.77	1.67x10 <sup>-10</sup>	3.80x10 <sup>-4</sup>	1.69x10 <sup>5</sup>	5.52	0.88	1.95	1.67 x10 <sup>5</sup>

Les faibles écarts observés entre  $k_1$  et  $k_2$  sont liés aux incertitudes engendrées par leur variabilité naturelle (valeurs moyennes sur la campagne de mesure) et par les approximations réalisées par rapport à la relation théorique définie par l'Eq. 4.17. Cela suggère un bon accord entre les différentes approches et souligne l'intérêt de la méthode de fermeture à partir des mesures in situ et de télédétection pour estimer la répartition spatiale massique avec des signaux lidar.

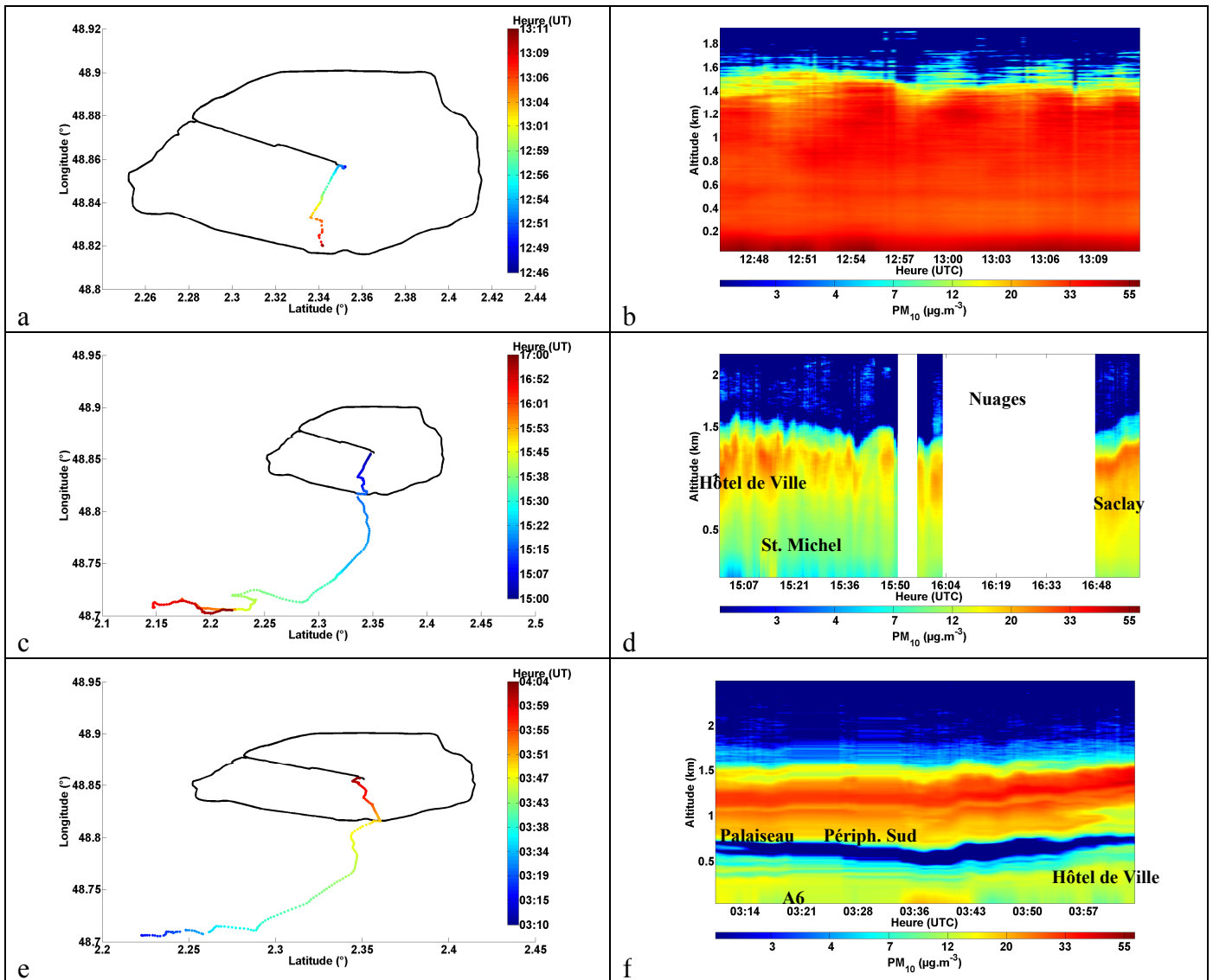
La méthode décrite par l'Eq. 4.20 présente l'avantage d'utiliser directement les mesures du néphélomètre et du TEOM sans recours systématique à la connaissance de la distribution en taille, sauf pour les corrections des angles de diffusion non mesurés par le néphélomètre. Cette approche permet une restitution avec un temps de calcul très court et fournit une très bonne approximation. A partir de la formule des variances, on peut en effet estimer l'incertitude  $\varepsilon_{k_2}$  sur  $k_2$ , sous l'hypothèse que les variables de l'Eq. 4.20 engendrent des erreurs  $\varepsilon_i$  indépendantes :

$$\frac{\varepsilon_{k_2}}{k_2} = \sqrt{\left(\frac{\varepsilon_{(C_{o,m})}}{C_{o,m}}\right)^2 + \left(\frac{\varepsilon_{(\omega_0)}}{\omega_0}\right)^2 + \left(\varepsilon_a \cdot \ln\left(\frac{355}{700}\right)\right)^2} \quad (4.21)$$

Avec  $\varepsilon_{C_{o,m}} \sim 0.5$  μg.m<sup>-2</sup>,  $\varepsilon_{\omega_0} \sim 0.03$  et  $\varepsilon_a \sim 0.05$ , on obtient finalement une erreur relative sur  $k_2$  de 12 %. En ajoutant l'erreur relative liée à la restitution du coefficient d'extinction de l'ordre de 10 %, on obtient une incertitude relative totale d'environ 25 % pour la détermination de la masse PM<sub>10</sub>. Cette erreur est du même ordre de grandeur que celle obtenue directement par la mesure du TEOM. En effet, cet instrument fournit la concentration massique avec une incertitude absolue de 5 μg.m<sup>-3</sup> ce qui donne une incertitude relative de ~15% pour l'aérosol parisien à laquelle il faut ajouter l'erreur sur la représentativité spatiale de la mesure ponctuelle du TEOM. Le lidar apparaît par conséquent comme un instrument permettant de représenter convenablement la distribution spatiotemporelle de la masse des aérosols. De plus amples détails sont donnés dans Raut et al. (2008b) en annexe.

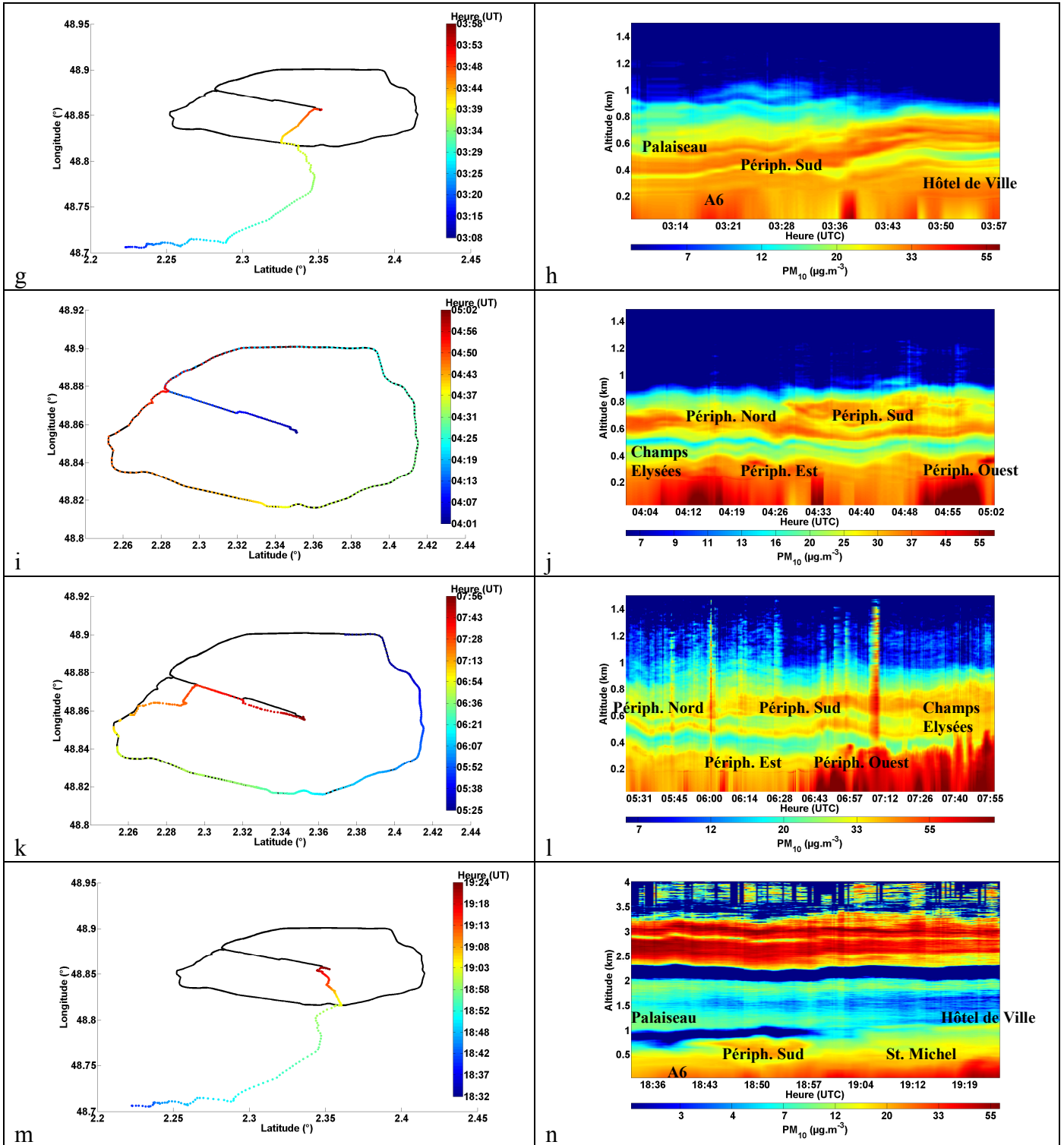
### 4.7.2 Application aux profils lidar obtenus durant LISAIR

Le système lidar LAUV a été embarqué sur un véhicule léger pour permettre une étude plus régionalisée des polluants particulaires en milieu urbain. Deux types de tests ont alors été effectués durant la campagne LISAIR. Le premier a consisté en l'étude du gradient de polluants particulaires entre la grande banlieue Sud de Paris (Saclay ou Palaiseau) et le centre de Paris (Hôtel de Ville de Paris). Pour le second test, les observations ont été réalisées en empruntant une grande partie du périphérique parisien. Les valeurs de coefficients d'extinction de l'aérosol inversés des signaux lidar à 355 nm ont été converties en concentrations massiques avec un coefficient  $k$  de  $1.7 \times 10^5 \mu\text{g.m}^{-2}$  (Sect. 4.7.1) et sont reportées sur la Fig. 4.3.





#### 4. Restitution de l'indice complexe de réfraction



#### 4. Restitution de l'indice complexe de réfraction

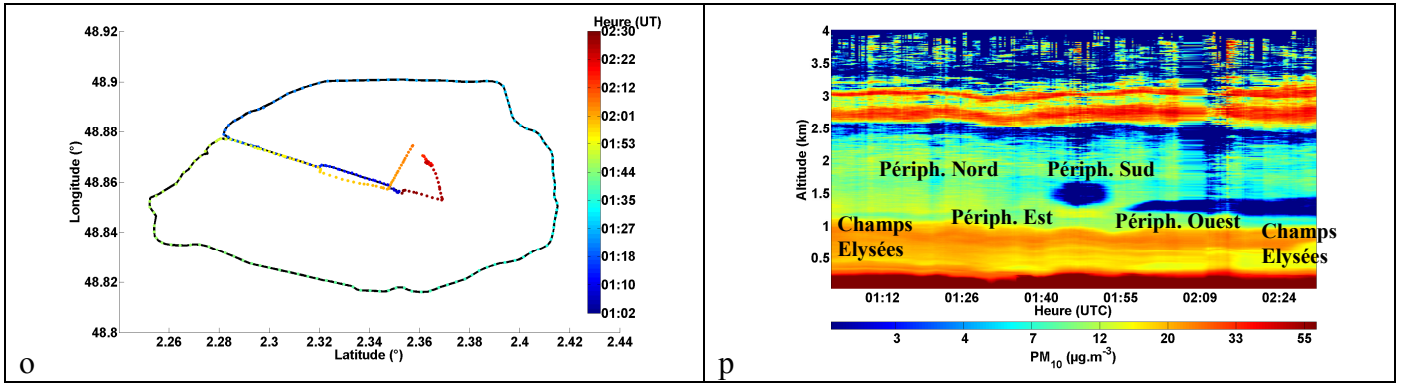


Fig. 4.3 : Trajet du système lidar LAUV (a, c, e, g, i, k, m, o) embarqué sur un véhicule léger en fonction du temps (échelle de couleur en heures TU) et évolution temporelle du profil vertical de la concentration massique (PM<sub>10</sub>) de l'aérosol (b, d, f, h, j, l, n, p). Les observations ont été réalisées les 24 mai (c, d, e, f), 25 mai (a, b, g, h, i, j, k, l), 26 mai (m, n) et 27 mai (o, p).

Cette étude permet de mettre en évidence des concentrations moyennes de particules de  $\sim 35 \mu\text{g.m}^{-3}$  dans une couche limite homogène bien développée (Fig. 4.3b) pour une journée ensoleillée au printemps ( $\sim 20^\circ\text{C}$ , 1017 hPa). La veille (Fig. 4.3d), la charge en aérosols dans la CLA était plus faible ( $\sim 20 \mu\text{g.m}^{-3}$ ) avec des concentrations plus élevées au voisinage du sommet de la couche. Ce gradient vertical peut être lié à des valeurs d'humidité relative légèrement plus élevées en altitude (RH $\sim 60\%$ ).

Les mesures effectuées durant la nuit avant la reprise du trafic automobile (Fig. 4.3f, 4.3h et 4.3j) mettent en évidence des couches stables correspondant à la couche d'inversion qui piège les polluants à basse altitude ( $< 500$  m le 24 mai et même  $< 400$  m le 25 mai) et la couche résiduelle de polluants de la veille en altitude (800-1500 m le 24 mai, 400-800 m le 25 mai). Dans ces couches, les concentrations massiques restent à peu près constantes. Avec l'accroissement du trafic routier (Fig. 4.3l), les concentrations en surface augmentent significativement et le développement lent de la CLA (température de  $17^\circ\text{C}$  en surface) va produire un mélange des couches de polluants résiduels avec ceux plus récemment émis en surface. Avec un facteur 2 sur les contenus en masse de particules au niveau du centre de Paris (de 35 à  $70 \mu\text{g.m}^{-3}$ ), l'impact sur la qualité de l'air est clairement identifiable. Cette augmentation de concentrations particulières en basses couches a également été observée le 26 mai en soirée (Fig. 4.3n) après formation de la couche d'inversion nocturne piégeant les polluants encore émis à cette période au centre de Paris (St Michel). Un panache lié aux émissions automobiles quelques heures auparavant au-dessus du périphérique Sud de Paris est aussi mis en évidence en altitude suite à l'inversion de température près de la surface associée à la tombée de la nuit.

Cependant, les observations lidar des 26 et 27 mai (Fig. 4.3n et 4.3p) font aussi apparaître, en plus de la couche d'inversion nocturne et de la couche résiduelle, une couche de particules en altitude d'origine différente. Ces particules entre 2.5 et 3.5 km d'altitude ont déjà été identifiées à la Sect. 3.3.9.4 comme étant issus de feux de biomasse en Espagne et au Portugal. Ils possèdent donc a priori des propriétés optiques et microphysiques assez différentes de celles observées en surface par les mesures in situ lors de l'étude de fermeture. Les valeurs de concentrations massiques données dans ces couches sont donc à prendre avec précaution. L'application des résultats de la méthode développée dans l'article de Raut and Chazette (2007) est problématique lorsque la distribution verticale des aérosols urbains est

n'est pas homogène dans la CLA et en présence de couches additionnelles en altitude advectées à grande échelle.

La détermination de l'ACRI pour chacune des couches de l'atmosphère n'est pas possible dans le cas où une mesure intégrée est nécessaire à la synergie expérimentale. Ce fut le cas du BER dans l'article de Raut and Chazette (2007) en raison de la mesure passive du photomètre permettant de contraindre les inversions lidar. Pour résoudre ce problème, on envisage d'exploiter les observations effectuées directement au sein de ces diverses structurales verticales. C'est l'objet du Chapitre 5.

## Chapitre 5

---

# 5 Discrimination verticale des couches d'aérosols par la connaissance de leurs indices de réfraction

## 5.1 Introduction

---

Qu'il s'agisse d'estimer la capacité d'une couche d'aérosols à diffuser ou absorber le rayonnement, d'évaluer le forçage radiatif additionnel causé par les particules ou de prévoir un impact de ces dernières sur les flux contrôlant la photodissociation de certaines molécules (donc sur la qualité de l'air), la connaissance de l'ACRI est une information précieuse. Nous avons vu au Chapitre 4 que cet indice de réfraction était défini par des lois de mélange chimiques. La grande variabilité dans les compositions des masses d'air et l'impact de processus de vieillissement de l'aérosol et des phénomènes dynamiques (coagulation, sédimentation...) suggèrent des écarts importants dans les ACRI des différentes couches d'aérosols : couche de surface, couche de mélange, couche résiduelle, couche dans la troposphère libre injectée depuis la CLA ou d'origine différente. La méthodologie développée dans le Chapitre 4 pour la détermination de l'ACRI fonctionne bien lorsque les variations des propriétés structurales et chimiques de l'aérosol dans la colonne d'air sont peu variables. En effet, elle s'appuie en particulier sur des mesures in situ représentatives des particules à proximité de la surface et de mesures photométriques passives qui intègrent toute la colonne atmosphérique. Les variations des concentrations ou des propriétés optiques avec l'altitude ne sont donc pas accessibles par l'approche développée.

Nous cherchons dans ce chapitre à décrire les modifications des propriétés de l'aérosol avec l'altitude par le biais des profils verticaux d'ACRI. Pour cela on applique la technique précédente à des mesures aéroportées lors de vols embarquant lidar et mesures in situ. Les données utilisées avaient été recueillies lors de la campagne ESQUIF en 2000.

## 5.2 Présentation de la campagne ESQUIF 2000

---

Le programme de recherche ESQUIF avait pour vocation de constituer une base de connaissances sur la pollution atmosphérique régionale en Ile-de-France entre 1998 et 2001 (Menut et al., 2000 ; Vautard et al., 2003 ; Chazette et al., 2005b). Un certain nombre de travaux de recherche a été entrepris afin de mieux comprendre l'origine et la distribution spatiale des épisodes de pollution. Il s'agissait d'améliorer les connaissances sur le transport et le mélange dans la CLA (turbulence, flux de chaleur), la photochimie des polluants et la

paramétrisation des différents facteurs influençant le rayonnement, les flux de polluants aux interfaces (émissions et transport à travers les frontières d'un domaine régional), l'évolution physico-chimique des aérosols et leur représentation dans un modèle de qualité de l'air, la production d'ozone par l'agglomération parisienne, la sensibilité des épisodes photochimiques franciliens aux émissions internes et externes à l'Ile-de-France, et la prévisibilité des épisodes de pollution.

Dans le cadre de ce programme, nous nous intéressons particulièrement à la composante aérosol de la circulation atmosphérique. En effet, les relations entre les formes physiques, chimiques, optiques de l'aérosol urbain ne sont pas suffisamment connues pour pouvoir évaluer précisément leurs rôles radiatif et chimique dans les situations de moyenne ou forte pollution que l'on rencontre au-dessus d'une grande agglomération comme Paris. Ces rôles peuvent être différents en fonction de la répartition en altitude et des propriétés de vieillissement de l'aérosol. Nous avons suivi en conséquence l'évolution de l'aérosol urbain dans le temps et dans l'espace, particulièrement dans la colonne d'atmosphère à partir d'instruments embarqués à bord de l'avion de recherche ARAT (Avion de Recherche Atmosphérique et de Télédétection) de l'Institut des Sciences de l'Univers (INSU). La campagne la plus documentée en termes d'aérosols a été conduite en juillet 2000. Trois vols ayant traversé le panache parisien ont été effectués. Ils présentent des conditions météorologiques favorables à la formation d'un panache de polluant bien établi. Un régime de vent local en provenance du Nord a caractérisé les 19 et 20 juillet ; le 19 juillet correspond à l'advection d'une masse d'air déjà polluée ayant traversée le Royaume Uni avant d'arriver en France et le 20 juillet à une masse d'air également en provenance du Nord mais avec une plus grande composante urbaine. Pour le 31 juillet le vent était plutôt du Sud avec une origine atlantique. La masse d'air associée à cette dernière situation est considérée comme peu polluée. Suite à des analyses statistiques basées sur des rétrotrajectoires, les journées traitées apparaissent comme majoritairement représentatives des masses d'air qui arrivent en région Ile de France durant les mois d'été. En effet, les masses d'air de secteur Ouest (Atlantique) représentent plus de 45% des occurrences et les masses d'air en provenance des régions industrialisées du Royaume Uni de l'ordre de 17% (Chazette et al., 2005b). Ces régimes de vent sont particulièrement intéressants à prendre en compte car l'Ile-de-France est sensible aux masses d'air polluées provenant d'autres régions européennes. Durant les périodes d'observations intensives, les mesures ont montré que la pollution atmosphérique en Ile-de-France peut être due à la superposition des émissions locales et d'une pollution transportée depuis des régions éloignées comme l'Europe du Nord (Menut et al., 2000).

La campagne a intégré dans son dispositif expérimental des mesures de granulométrie, de diffusion et le Lidar LEANDRE-1 (Pelon et al., 2002) embarqués à bord de l'ARAT. Cet instrument a permis d'effectuer des mesures résolues suivant la verticale à l'intérieur de la CLA et notamment dans la couche de mélange où ont eu lieu les mesures par prélèvements in situ. Le dispositif était complété par des mesures chimiques et radiométriques au sol.

### 5.3 Profils verticaux d'ACRI en région parisienne

---

#### 5.3.1 Généralités

Nous cherchons à étudier la distribution verticale des propriétés optiques et microphysiques de l'aérosol à l'intérieur de la CLA avec une instrumentation aéroportée. La mesure en surface ou à une seule altitude ne pouvant s'avérer représentative de toute la CLA, les mesures sont recueillies à chaque altitude de vol, ce qui permettra d'évaluer leur représentativité à plus grande échelle.

De manière liminaire, il est important d'observer qu'il n'existe pas de relation directe évidente entre l'évolution des propriétés de diffusion et celle des concentrations en nombre d'aérosols. Les concentrations importantes observées dans le panache parisien révèlent essentiellement la présence de très petits aérosols (mode de nucléation) qui n'influencent pas significativement les propriétés de diffusion. Randriamiarisoa (2004b) a ainsi montré qu'à l'intérieur du panache, le coefficient de diffusion par les aérosols a été augmenté d'un tiers par rapport aux zones en amont de Paris tandis que la production de BC (dont la partie réelle de l'ACRI est très forte) a doublé sur Paris. Cela rappelle le fait qu'une grande partie du BC se trouve dans le mode de nucléation qui est peu efficace optiquement dans le visible. A l'inverse, des zones en dehors du panache parisien peuvent présenter de fortes valeurs du coefficient de diffusion qui ne sont pas uniquement dues à des concentrations en particules (en particulier en BC) importantes. Les valeurs élevées du coefficient de diffusion ne sont donc pas forcément liées à une augmentation d'aérosols carbonés mais plutôt à des processus de vieillissement caractérisés par des condensations de sels autour des particules (Randriamiarisoa et al., 2006).

Si les fluctuations de concentrations en particules ne suffisent pas à expliquer les variations des propriétés diffusantes de l'aérosol, il est nécessaire de s'interroger sur l'impact des paramètres pilotant le processus de diffusion, i.e. la distribution en taille et l'indice de réfraction. Lors de vols à une altitude constante de 950 m (comme celui réalisé le 31 juillet, Fig. 5.1a) avec des passages à l'intérieur et à l'extérieur du panache, nous avons constaté que le mode d'accumulation (optiquement efficace) présentait un rayon modal (Fig. 5.1b) et une dispersion (Fig. 5.1c) quasi-constants alors que le coefficient de diffusion (Fig. 5.1d) était caractérisé par une forte variabilité. Comme indiqué précédemment, ces variations des valeurs du coefficient de diffusion mesurées en dehors du panache ne sont pas uniquement causées par des changements de concentrations. Il faut donc envisager l'hypothèse selon laquelle un aérosol vieilli présenterait un indice de réfraction différent de celui qui caractérise les particules récemment émises sur la zone urbaine par la circulation automobile, les aéroports ou les sources industrielles (usines d'incinération notamment).

## 5. Discrimination verticale des couches d'aérosols

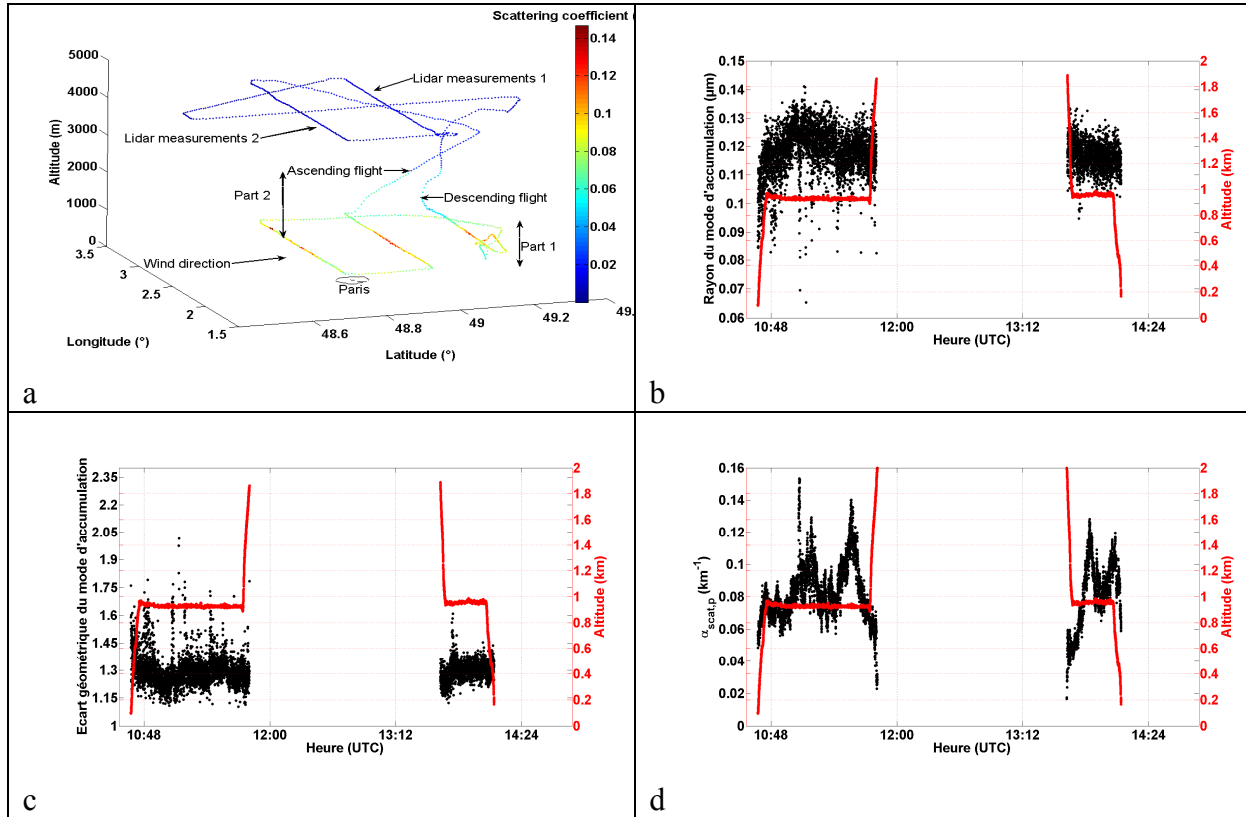


Fig. 5.1 : Plan de vol de l'ARAT le 31 juillet 2000 (a) et variabilité du rayon modal du mode d'accumulation (b), de l'écart-type associé (c) et du coefficient de diffusion de l'aérosol (d) lors de la partie du vol effectuée à 950 m avec des passages à l'intérieur et à l'extérieur du panache.

Après une description des vols effectués les 19, 20 et 31 juillet, l'article de Raut and Chazette (2008a) applique la méthode de restitution des indices détaillée dans le Chapitre 4 aux mesures effectuées à bord de l'ARAT. Les modifications observées dans la colonne sont décrites et discutées en fonction du type d'aérosol, de l'origine et de l'histoire de la masse d'air et de l'hygroscopicité. La représentativité spatio-temporelle des indices est évaluée par des comparaisons avec les ACRI restitués à partir des observations Almucantar des photomètres. Un des points importants de l'article de Raut and Chazette (2008a) concerne l'estimation des écarts avec les indices calculés à partir de la composition chimique mesurée en surface selon différents états de mélange (Fig. 5.2) : mélange interne homogène, séparation entre partie fine en mélange interne et partie grossière, ou mélange externe.



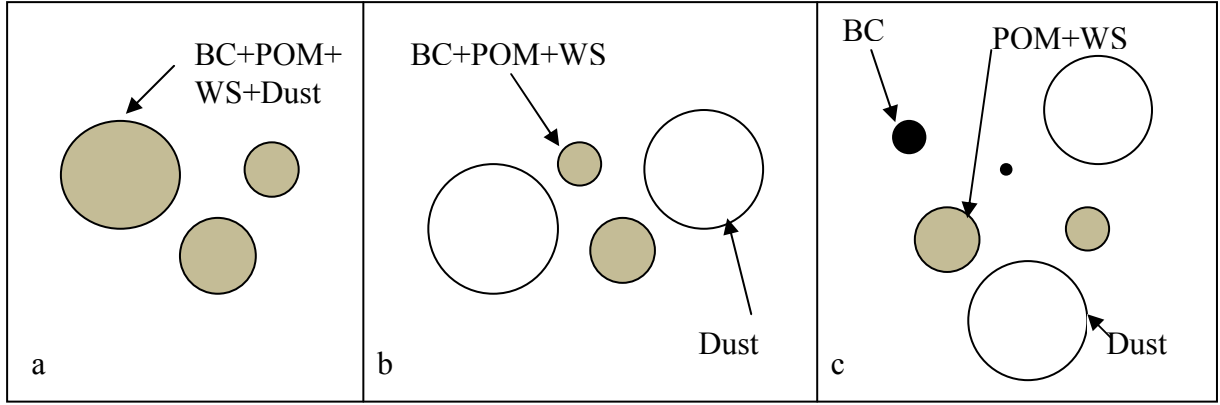


Fig. 5.2 : Ensemble des états de mélange traités dans l'article de Raut and Chazette (2008). (a) : mélange interne entre partie fine (BC, éléments non absorbants : POM, WS) et partie grossière (Dust), (b) : mélange externe entre partie fine (BC, éléments non absorbants : POM, WS) et partie grossière, (c) : mélange externe entre BC, éléments non absorbants (POM, WS) et partie grossière.

Pour séparer partie fine et partie grossière (cas (b) et (c) de la Fig. 5.2), on décompose la distribution en taille en attribuant le mode grossier à la composante Dust. On recherche alors l'indice de réfraction équivalent qui fournit le coefficient de diffusion et l'albédo de simple diffusion qui seraient restitués en combinant les contributions de la partie fine et de la partie grossière par la théorie de Mie. Il suffit pour cela de connaître les indices de réfraction de la partie fine et de la partie grossière. Dans le cas (b) de la Fig. 5.2, on applique simplement la relation linéaire de pondération massique à la partie fine qui se trouve en mélange interne homogène. Dans le cas (c) de la Fig. 5.2, la situation est plus complexe. On divise toutes les particules de la partie fine (au nombre de  $N$ ) en deux types d'aérosols de distribution monomodale : un noyau de BC d'une part, et une composante presque non absorbante incluant POM et WS. Le rayon modal  $r_m$  de chacun de ces deux types d'aérosols (de masse  $m$  et de masse volumique  $\rho$ ) est calculé en combinant les relations :

$$\frac{4}{3}\pi \cdot \overline{r^3} = \frac{m}{N \cdot \rho} \quad (5.1)$$

$$\overline{r^3} = r_m^3 \cdot \exp\left(\frac{9}{2} \cdot \ln^2(\sigma)\right) \quad (5.2)$$

ce qui donne :

$$r_m = \left[ \frac{m \cdot \exp\left(-\frac{9}{2} \cdot \ln^2(\sigma)\right)}{N \cdot \frac{4}{3}\pi \cdot \rho} \right]^{\frac{1}{3}} \quad (5.3)$$

où  $\sigma$  est l'écart géométrique de la distribution monomodale égale à celui de la distribution initiale du mode fin (accumulation). On recherche alors l'indice équivalent de la partie fine de l'aérosol qui vérifie le coefficient de diffusion et l'albédo de simple diffusion calculés en utilisant la combinaison des deux distributions monomodales du mode fin dont les ACRI respectifs sont connus.

Enfin, une étude de sensibilité importante est menée dans l'article de Raut and Chazette (2008a) pour estimer les incertitudes liées à l'hypothèse d'un BER constant dans la colonne.



### 5.3.2 Application (Article de Raut and Chazette, 2008a)

#### Vertical profiles of urban aerosol complex refractive index in the frame of ESQUIF airborne measurements

J.-C. Raut<sup>1</sup> and P. Chazette<sup>1</sup>

[1]{Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement, Laboratoire mixte CEA-CNRS-UVSQ, CEA Saclay, F-91191 Gif-sur-Yvette, France}

##### Abstract

A synergy between lidar, sunphotometer and in situ measurements has been applied to airborne observations performed during the Etude et Simulation de la QQualité de l'air en Ile-de-France (ESQUIF), enabling the retrieval of vertical profiles for the aerosol complex refractive index (ACRI) and single-scattering albedo with a vertical resolution of 200 m over Paris area. The averaged value over the entire planetary boundary layer (PBL) for the ACRI is close to  $1.51(\pm 0.02) - i0.017(\pm 0.003)$  at 532 nm. The single-scattering albedo of the corresponding aerosols is found to be  $\sim 0.9$  at the same wavelength. A good agreement is found with previous studies for urban aerosols. A comparison of vertical profiles of ACRI with simulations combining in situ measurements and relative humidity (RH) profiles has highlighted a modification in aerosol optical properties linked to their history and the origin of the air mass. The determination of ACRI in the atmospheric column enabled to retrieve vertical profiles of extinction coefficient in accordance with lidar profiles measurements.

##### 1. Introduction

A variety of processes can lead to the production of atmospheric particles. They may arise from natural sources such as sea-spray, desert dust storms and volcanic activity, and also from anthropogenic sources such as fossil fuels combustion and biomass burning activities (e.g. Lenoble, 1993; Lioussse et al., 1995; Tegen and Fung, 1995), and from gas-to-particles conversion processes (Pandis et al. 1995). Among all the numerous sources of anthropogenic particles, the pollutant aerosols emitted in large urban areas, and mainly consisting of sulfate, nitrate, black carbon and particulate organic matter, are now clearly recognized as one of the most important. They modify the local or regional climate when pollutants are transported out of the source regions into surrounding areas: these pollutants indeed influence the albedo of the atmosphere –

surface system and can interact with clouds (Pruppacher and Klett, 1997).

The high variability of physical and optical properties of particles linked to meteorological parameters such as temperature, humidity and wind speed require studying aerosols in their natural state. Over the past several years, aerosol features have been intensively investigated through numerical modelling (Braslau and Dave, 1973; Hodzic et al., 2006) and thanks to experiments (e.g. Zobel, 1966; Method and Carlson, 1982; Haywood, 2003). Detailed information on aerosol physical and optical properties can be provided by surface-based in situ measurements but those observations often remain limited to the ground. Aerosol properties can however be measured by aircraft instruments. Dubovik et al. (2000) also ascertain aerosol features by intensively measuring solar transmission and sky radiation. But results of such passive measurements are averaged over the entire atmospheric column and cannot provide information regarding the vertical distribution of particles. In this way, remote sensing approaches turn out to be a well appropriate and complementary tool in the determination of particle optical properties (e.g. Chazette, 2003). Fuller and more accurate studies are required because these aerosols play a critical role in the atmospheric energy budget and have long-term effect on the climatic changes (Charlson and Pilat, 1969).

The study presented in this paper underlines the ability of the combination between aerosol size distribution and scattering cross-section measured by a french research aircraft to determine vertical profiles of aerosol complex refractive index (ACRI), a crucial parameter driving optical properties and highly dependent on chemical composition of the particles. Retrievals of ACRI vertical profiles are indeed scarce. Ferrare et al. (1998) measured both aerosol extinction and backscattering as a function of altitude thanks to a Raman lidar to infer real ACRI, single-scattering albedo and humidity correction factors of tropospheric aerosols in Oklahoma in conjunction with aerosol size distribution. Multiwavelength backscatter and extinction lidar measurements also enable to retrieve vertical profiles of ACRI. A detailed description of such an inversion scheme has

been given by Müller et al. (1999) and applied to pollution plumes advected from the European continent out over the Atlantic Ocean (Müller et al., 2002) giving profiles split into layers of variable depth from 400 to 700 m or over an Indian aerosol plume (Wagner et al., 2001). Redemann et al. (2000) combined lidar, sun photometer and particle sizers data to retrieve both real and imaginary parts in the atmospheric column over Atlantic Ocean that would provide the same backscatter signal in a forward calculation. Without the knowledge of scattering coefficients, they solved this ill-posed problem by assuming a constant ACRI over a certain vertical distance associated with various sets of measurements for size distribution and lidar within the same atmospheric portion. Redemann et al. (2000) minimized the relative difference of scattering ratios from lidar and from calculation using a grid of discrete values both in the real and in the imaginary parts. That led to only two complex refractive indices in the boundary layer: one on the surface layer and the other one representative on a boundary-type layer. The main limitation of this method is to find a minimum of a function of two variables on a finite grid since the grid itself can introduce errors in the retrieved ACRI.

In this study, ACRI retrieval has been performed in the framework of the Etude et Simulation de la Qualité de l'air en Ile-de-France (ESQUIF) experiment that took place over the Paris area in July 2000, involving airborne measurements (Chazette et al., 2005). Next we relate the variations in the retrieved ACRI to the meteorological conditions during the experiment and discuss their evolution in the atmospheric column by looking at their past and the origin of the air masses. We finally show how extinction profiles can be simulated to closely reproduce the lidar signals in ambient conditions.

## 2. Experimental setup

### 2.1 Instruments

The french research aircraft Fokker27/ARAT (Avion de Recherche Atmosphérique et de Télédétection) was used during the ESQUIF program in July 2000 for in situ and remote sensing measurements within the lower troposphere. The aircraft instrumentation included **the lidar LEANDRE-1** (Lidar aéroporté pour l'Etude des Aérosols, des Nuages, de la Dynamique, du Rayonnement et du cycle de l'Eau) to document the atmospheric reflectivity at 532 and 1064 nm in the lower troposphere. LEANDRE 1 uses sub-micron aerosols as tracers to document the lower tropospheric structure with a vertical resolution of 15 m (Pelon et al., 2002). The mean relative error for the extinction coefficient is generally less than 10% when the inversion of lidar profiles is constrained using a sunphotometer

(Chazette, 2003) and when the relative humidity (RH) stays lower than 75%, as is the case here. **The airborne optical particle sizer PCASP** model 100, developed by Particle Measuring Systems (PMS Inc, Boulder, Co), gives access to 15 classes of particles ranging from  $>0.1$  up to  $>3$   $\mu\text{m}$  in diameter. It is used to retrieve the aerosol number size distribution in the lower troposphere. The accuracy on the aerosol number concentration measurement is about 5% for submicron aerosols (Dye and Baumgardner, 1984). The size distribution retrieved from this instrument does not necessarily represent that at ambient conditions. By comparing the PCASP aerosol size measurements with those measured by a forward scattering spectrometer probe instrument that did not dry the aerosols, Strapp et al (1992) pointed out that the particles appear to be dried by the PCASP heating before measurement at all RH up to 80-90%, i.e. in all cases considered in this study. Number concentrations of submicron particles were measured with **3022A CPC TSI® model particle counters**. These counters detect all particles within a diameter size range from 0.007 to 3  $\mu\text{m}$ , with a 100% efficiency for 0.02  $\mu\text{m}$ . Particle concentrations are retrieved with a relative uncertainty of 5% (Chazette and Liousse, 2001). **A three-wavelength (450, 550 and 700 nm) nephelometer** (manufactured by TSI®) was used onboard the aircraft. This instrument measures the aerosol scattering coefficient in a  $7-170^\circ$  range of scattering angle (e.g. Bodhaine et al., 1991; Flamant et al., 2000). To take into account the non-observed scattering angles, a correction factor has been assessed, from Mie computations, to be close to 1.035 for urban aerosols (Chazette et al., 2005). This assessment was done using the retrieved aerosol mean size number distribution and the mean complex refractive index during July 2000. Such a small value for the correction factor can be explained by the predominant very small particles in the size distribution (Table 1) since these latter do not clearly modify the phase function in the small scattering angles. The instrument scattering chamber was maintained at about 35-40% RH (dry aerosol conditions). In dry conditions, the relative uncertainty after calibration is around a few per cent (evaluated from the reproducibility of laboratory measurements).

Optical thickness data of the Paris area were obtained from the AEROSOL ROBOTIC NETWORK (AERONET): the channels of the **sunphotometer** used for this study are centered at (440 nm and 670 nm) or (438 nm and 669 nm) given the location of the site, with bandwidths of less than 20 nm and the instrument field of view is about  $1^\circ$  (Holben et al., 1998). The AERONET database gives a maximal absolute uncertainty of 0.02 for the optical thickness, independent of the aerosol loading. AERONET website indeed suggests an uncertainty of 0.01 – 0.02 in aerosol optical thickness, that is wavelength dependent, due to calibration uncertainty for the field instruments

## 5. Discrimination verticale des couches d'aérosols

Table 1: Mean aerosol size number distribution characteristics derived from aircraft on 19, 20 and 31 July 2000 during ESQUIF program. A lognormal size distribution is assumed, which is characterized by up to three modal radii ( $r_1$  and  $r_2$ ), the associated geometric dispersions ( $\sigma_1$  and  $\sigma_2$ ), and occupation rates ( $x_1$  and  $x_2 = 1 - x_1$ ). The temporal variability is given in parenthesis. The uncertainties due to the retrieval procedure are also specified.

Date		$r_1$ ( $\mu\text{m}$ )	$\sigma_1$	$r_2$ ( $\mu\text{m}$ )	$\sigma_2$	$x_1$ (%)
19/07/2000	Part 1	0.042 ( $\pm 0.008$ )	1.363 ( $\pm 0.196$ )	0.112 ( $\pm 0.012$ )	1.326 ( $\pm 0.160$ )	73.8 ( $\pm 9.2$ )
19/07/2000	Part 2	0.039 ( $\pm 0.003$ )	1.543 ( $\pm 0.083$ )	0.120 ( $\pm 0.004$ )	1.231 ( $\pm 0.030$ )	72.2 ( $\pm 3.0$ )
20/07/2000		0.040 ( $\pm 0.006$ )	1.585 ( $\pm 0.182$ )	0.119 ( $\pm 0.006$ )	1.222 ( $\pm 0.042$ )	71.2 ( $\pm 4.5$ )
31/07/2000	Part 1	0.031 ( $\pm 0.004$ )	1.486 ( $\pm 0.049$ )	0.118 ( $\pm 0.008$ )	1.302 ( $\pm 0.091$ )	81.7 ( $\pm 4.2$ )
31/07/2000	Part 2	0.034 ( $\pm 0.003$ )	1.496 ( $\pm 0.053$ )	0.119 ( $\pm 0.007$ )	1.257 ( $\pm 0.069$ )	81.4 ( $\pm 3.2$ )
Uncertainties from Monte-Carlo method		0.01	0.01	0.015	0.02	3

([http://aeronet.gsfc.nasa.gov/new\\_web/system\\_descriptions\\_calibration.html](http://aeronet.gsfc.nasa.gov/new_web/system_descriptions_calibration.html)).

The uncertainty on the aerosol optical thickness at the considered wavelength (532 nm in this paper) can be calculated from maximal absolute uncertainty (0.02) and errors on the Angström exponent.

**Aerosol chemical composition** was also analyzed from sampling performed at the ground level. Aerosol samples devoted to carbonaceous analyses were collected during 19 and 20 July, 2000, with low volume sampler ( $3 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ ) on pre-cleaned Whatman GF/F glass-fiber filters. The carbon mass was determined through a thermal protocol. The precision of the results is estimated to be of the order of 10%. Nuclepore membranes were also mounted on stack filters unit in order to separate the coarse and the fine fraction of the inorganic water soluble (WS) fraction of the aerosols, without sea-salts. These filters were used for measuring the major soluble inorganic ions in the particle by ion chromatography. The precision on ion chromatography analysis has been evaluated to be 5-10% (Randriamiarisoa, 2006).

### 2.2 Flight plans

Flight plans were established according to the daily synoptic conditions and Planetary Boundary Layer (PBL) depths using ECMWF (European Center for Medium-range Weather Forecast) forecasts and the flight altitudes imposed by Air Traffic Control. Flight plans for 19 and 31 July are fully

described in Chazette et al. (2005) and shown in Fig. 1a and 1e, together with the raw aerosol scattering coefficient measured by the airborne nephelometer, as well as the corresponding vertical profiles of RH. The scattering coefficient evolution illustrates the location of the pollution plume around Paris. The flight plan for 20 July has been also taken into account and shown in Fig. 1c.

The major difference between the two periods was the direction of the air flow. We computed two-day back-trajectories of air masses arriving at 500 m above mean sea level (MSL) in the mixed layer (red), 1500 m MSL close to the top of the PBL (blue), 2500 m MSL in the free troposphere (green) at Paris using the Hysplit model (courtesy of NOAA Air Resources Laboratory; <http://www.arl.noaa.gov>). This model uses the meteorological data to compute advection and dispersion of air parcels. Fig. 2 shows these trajectories for air parcels arriving over Paris area at 1200 UT on the days listed. Whereas the trajectories ending at 500 m MSL spent time near the surface, the trajectories at 1.5 and 2.5 km remained almost constant in altitude. We can however notice that back trajectories in the PBL are suspect. We therefore performed a sensitivity study on the back trajectories from Hysplit. That study was conducted considering a set of end points surrounding the exact location of Paris ( $48.85^\circ\text{N}$ ,  $2.33^\circ\text{E}$ ). The corresponding locations belong to the range [ $48.55^\circ\text{N} - 49.05^\circ\text{N}$ ] and [ $2.23^\circ\text{E} - 2.43^\circ\text{E}$ ]. This is particularly crucial in the lowest altitudes. In our case (500 m), we did not observed any influence of the multiple trajectories in altitude. It guarantees the lack of sensitivity of the precise location of the end point. One has to note that Hysplit model is

## 5. Discrimination verticale des couches d'aérosols

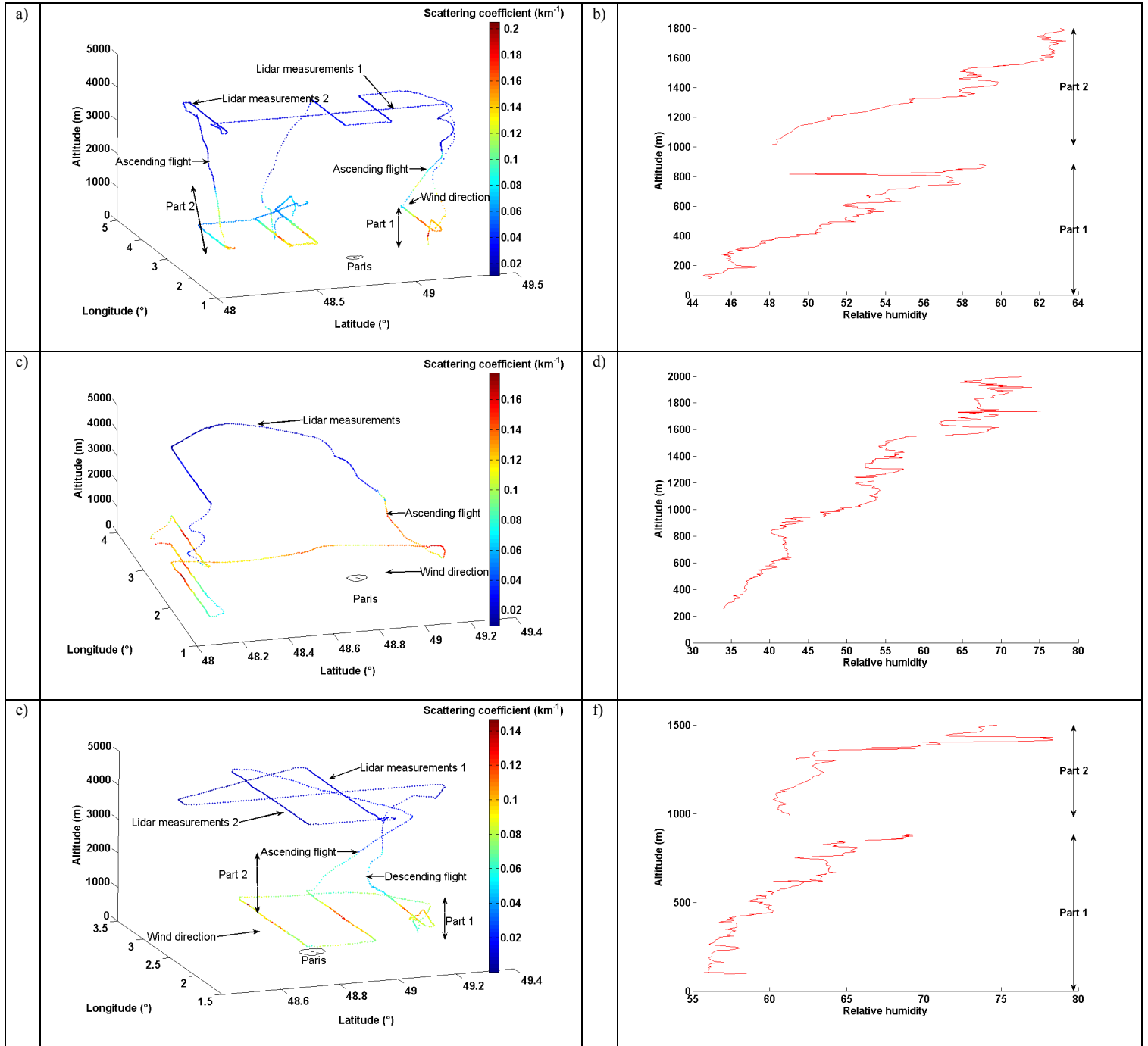


Figure 1: Flight plans (a, c and e) and vertical profiles of RH (b, d and f) over Paris area measured during the ascent on 19 (a, b), 20 (c, d) and 31 (e, f) July 2000 respectively. The scattering coefficient measured onboard the aircraft is color coded. The separation of the vertical profiles in two parts (Part 1 and Part 2) is related to a discontinuity associated with horizontal explorations.

working at a large scale that does not cover turbulent mixing processes. The several depositions on the surface along the way of the backtrajectories arriving at 500 m have not any physical significance. But they simply suggest that the air mass at this altitude level may stay in the PBL.

To better sample the urban pollution production, crosswind flight legs were performed within the PBL. Calculations performed in this study following the altitude stem only from ascending

phases of the flights since important bias on in situ measurements are observed during descending phases. The flow rate, for each instrument sampling line, has been controlled during the ascending phases to ensure flow conditions as close as possible to isokinetic. Isokinetic problems involved in aerosol measurements have been minimized during ascending flights.

On 19 July, under northerly wind conditions, two flights were performed at 1040-1330 UTC and 1420-1715 UTC. The

## 5. Discrimination verticale des couches d'aérosols

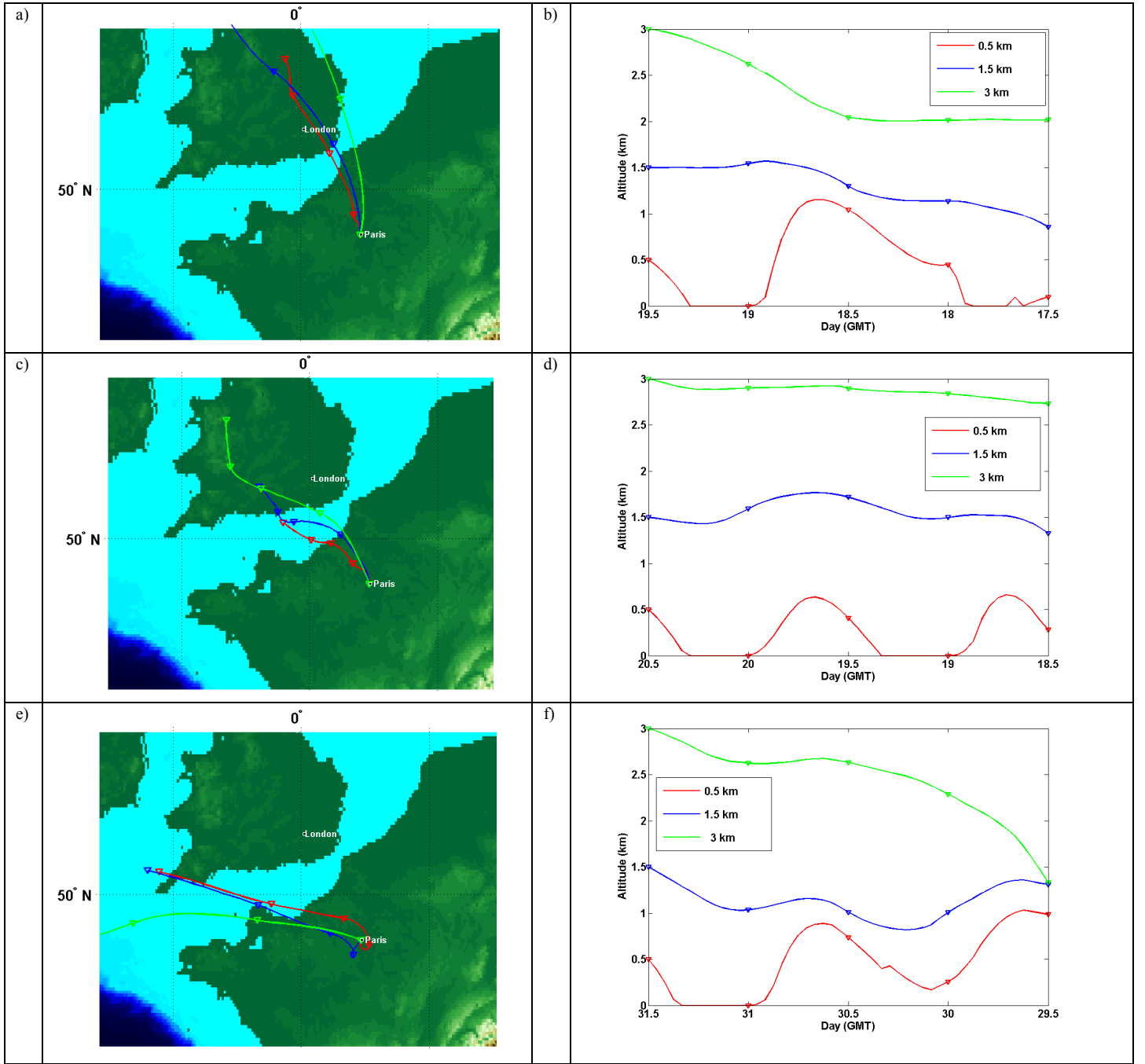


Figure 2: Back trajectories for three 2-day periods ending over Paris at 1200 UTC on (a) 19 July, (c) 20 July and (e) 31 July at 0.5, 1.5, and 2.5 km MSL (courtesy of NOAA Air Resources Laboratory <http://www.arl.noaa.gov>). The triangles give the 12-h spacing. The location of the air mass for each day against the altitude is given in (b), (d) and (f), respectively.

incoming air mass originating from Great Britain was already rich in aged aerosol indicating that the air mass had flown over polluted areas prior to reaching the Paris area (Chazette et al., 2005). Two parts corresponding to upwind and downwind sides of Paris can be distinguished for computations. The first part (Part 1) starts from Creil with a low level upwind leg. The second part (Part 2) begins with a leg further south over the countryside before climbing at  $\sim 4200$  m MSL. Lidar measurements were realized on a first crosswind leg coinciding

with Part 2, and then a south-north segment toward Creil coinciding with Part 1. According to backscatter lidar profiles, the mean PBL depth was about  $1800 \pm 100$  m during the considered flight period. The retrieved optical thicknesses at 532 nm were  $0.25 \pm 0.03$  before 1030 UTC and  $0.3 \pm 0.05$  before 1200 UTC above Palaiseau (south of Paris) and Paris AERONET stations respectively. The corresponding values are given with an errorbar higher than 0.02 because the calculation of the uncertainty has been realized at 532 nm, which takes into

account the errors on aerosol optical thicknesses (0.02) and on Angström exponent. After these hours, no other reliable optical thicknesses data were available due to increased cloudiness.

On 20 July, the flight was scheduled between 1400 and 1745 UTC. It was dedicated to the study of vertical exchanges in the low troposphere inside Paris pollutant plume. The incoming air mass is carried by a north airflow which is probably already polluted, but with a more urban pollution component (Cardiff, Bristol). In situ measurements are realized during the ascending flight, upwind of Paris. Nadir pointing lidar measurements were made from an altitude of  $\sim 4200$  m (MSL) in the free troposphere. The PBL height was then about  $2000 \pm 100$  m. As for 19 July, similar values have been observed for optical thicknesses measured on 20 July with  $0.25 \pm 0.03$  above Palaiseau AERONET station.

On 31 July, the flight was scheduled between 1030 and 1400 UTC. The 31 July event was characterized by westerly advection of clean air masses originating from the Atlantic Ocean. However the air mass trapped in the PBL entered the Paris area from the south. From Creil (36 km north of Paris), the aircraft headed south at 900 m MSL (Part 1) and performed two legs before climbing (Part 2) to 4200 m MSL where lidar measurements were performed on two legs, colocalized respectively with Part 2 and Part 1. The PBL height was about  $1500 \pm 100$  m. The mean optical thicknesses were smaller with values of  $0.11 \pm 0.03$  above Palaiseau or Creteil (southeast of Paris),  $0.15 \pm 0.03$  above Paris and  $0.22 \pm 0.04$  above Creil (North of Paris) AERONET stations, but pointing out a significant increase downwind of the urban area.

On 19 and 31 July, we have distinguished two parts, called Part 1 and Part 2 since these days have long flight legs at 950 m, where the plane was circumventing the urban area. Aerosols measured in the lowest altitudes ( $< 950$  m) are therefore different from aerosols studied over 950 m. Part 1 and Part 2 thus correspond to height ranges where aerosol properties are studied for each specific day. In the following, the lower part (Part 1) moreover corresponds to measurements inside Paris plume, whereas the upper part (Part 2) is related to measurements outside the plume.

### 3. Methodology to retrieve vertical profiles of ACRI

Laboratory experiments can determine the ACRI from bulk aerosol samples (e.g., Volz, 1973). The advantage of estimating ACRI via remote sensing lies in the determination of optical properties of airborne particles under real atmospheric conditions (e.g., Dubovik et al., 2002; Sinyuk et al., 2003; Todd et al., 2007). In a previous study (Raut and Chazette, 2007), we calculated the ACRI through a synergy between lidar,

sunphotometer and ground-based instrumentation. ACRI were assessed to be  $1.56-0.034i$  at 355 nm and  $1.59-0.040i$  at 532 nm in Paris, thus leading to single-scattering albedo values between 0.88 and 0.80, respectively. This determination was nevertheless limited to the surface and only a simulation of vertical profiles of ACRI could be performed to extend the results to the entire PBL. This method was assuming a vertically homogeneous aerosol composition, implying that modifications in vertical profiles were primarily caused by variations of RH in the atmospheric column.

In this study, the evolution of ACRI as a function of altitude can be retrieved from in situ airborne observations and lidar measurements constrained with sunphotometer values. That method will be described in Sect. 3.1. Aircraft in situ measurements often subject the aerosols to changes in RH between the atmosphere and the instrument (Baumgardner and Huebert, 1993). Corrected ACRI values can therefore be deduced from simulations implying relative humidity profiles simultaneously measured onboard the plane (see Sect. 3.2). Results of the two approaches are compared in Sect. 4. Uncertainties on the real and imaginary parts of the ACRI have been determined using a Monte-Carlo approach thanks to 200 Gaussian random realizations around the variability of size distribution parameters.

### 3.1 ACRI retrieval from ascending flight

The determination of the real part of the ACRI is the result of a convergent method between various scattering cross-sections calculated in a Mie model and the scattering cross-section measured by the coupling of nephelometer, particle sizer and particle counter instruments. Using spherical particles in a Mie code is justified by a very low lidar depolarized ratio ( $\sim 4\%$ ). The approach has already been described in Raut and Chazette (2007). In this study, the method previously described is applied to the observations of ESQUIF campaign on 19, 20 and 31 July, 2000. Data retrieved from nephelometer at 550 nm and particle sizer enabled to assess both the ACRI and the single-scattering albedo as a function of altitude. A diagram describing all the numbered steps of our method has been drawn on Fig. 3, including all the comparisons validating the approach and described in Sect. 5. The main steps of the procedure are reminded in the following:

1. Owing to the speed of the plane during ascending phases, measurements from the particle sizer and the nephelometer have been vertically averaged for every 200 m.

## 5. Discrimination verticale des couches d'aérosols

2. The second step is the retrieval of the number size distribution. A standard method using the proximity recognition

approach was used to retrieve the aerosol size distribution

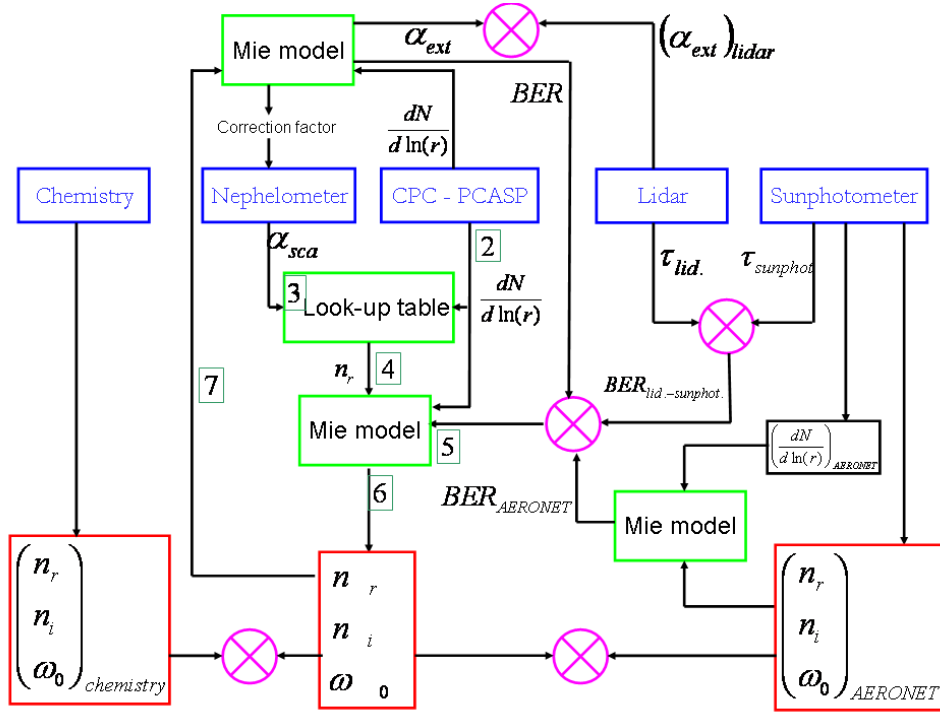


Figure 3: Diagram of the synergetic approach to retrieve aerosol optical properties: backscatter-to-extinction ratio BER, complex refractive index (real  $n_r$  and imaginary  $n_i$  parts), single-scattering albedo  $\omega_0$  from optical thicknesses ( $\tau_{sunphot}$  for sunphotometer and  $\tau_{lid}$  for lidar), integrating extinction coefficient  $\alpha_{ext}$ , number size distribution  $\frac{dN}{d \ln(r)}$  and scattering-cross section  $\alpha_{sca}$ . Pink circles represent comparisons between optical parameters.

assuming 2 modes in altitude (nucleation and accumulation) with a lognormal distribution. The method consists in best fitting the particle numbers in the classes deduced from the PCASP and the CPC measurements. The distribution is characterized by the modal radius ( $r_1$  and  $r_2$ ), the associated geometric dispersions ( $\sigma_1$  and  $\sigma_2$ ), and the occupation rates ( $x_1$  and  $x_2 = 1 - x_1$ ). Mean parameters of the lognormal size distributions are given in Table 1.

3. For each altitude level, the Mie code is used to calculate the scattering cross-section for each couple of ACRI chosen in the range 1.3 – 1.9 for the real part and  $10^{-8}$  – 0.2 for the imaginary part. (401 × 401) couples of values of real and imaginary parts belonging to this domain have been considered in this study, enabling the construction of a look-up table of scattering cross-sections for the given altitude.

4. The retrieval of the complex refractive index does not require any iterative procedure. The determination of the real part is

however the result of a minimization of the differences between the measured cross-section and a look-up table. The duration of the computations increases with the smoothness of the grid building the look-up table. The whole of the solutions for the scattering cross-section can be represented by a curve in the plane  $(n_r, n_i)$ , as in Raut and Chazette (2007). The main feature of this curve is the independence of the solution from the real part of ACRI: the real part can be assessed because its observed dispersion is very weak (<0.02) in the likely range of the imaginary part (<0.05) for anthropogenic aerosols from automobile traffic. Hence, the uniqueness of the real part is guaranteed. Automobile traffic is indeed the main source of photooxidant pollution and aerosols in large cities such as Los Angeles (Lurmann et al., 1997) or Paris (Menut et al., 2000). There are naturally other sources of anthropogenic aerosol particles like emissions from plants burning household refuse or airports (quoted in Sect. 4.3), but they can hardly contradict the very large hypothesis  $n_i \leq 0.05$ .

5. Lidar inversion thanks to sunphotometer measurements enabled to retrieve the backscatter-to-extinction ratio (BER) of the entire aerosol vertical column with an iterative procedure, as in Chazette (2003). The BER has been given by Chazette et al. (2005) to be equal to  $0.014 \text{ sr}^{-1}$  from the synergy between sunphotometer and LEANDRE-1 airborne lidar. An altitude-dependent BER would have been indeed particularly appreciated in this study but the lack of a Raman lidar leads us to suppose a constant BER in the atmospheric column. The only way to introduce errorbars on the BER lies on a comparison of the BER from lidar and that calculated using a Mie model and the measured microphysical parameters taking into account RH profile with altitude. This study will be performed in Sect 5.5.

6. A set of BER values is then computed thanks to the Mie code for several couples of ACRI whose only the imaginary part can vary, the real part being determined in step 4. The requested imaginary part is thus the one providing the closest BER value than that calculated in step 5. The uniqueness of the real part also triggers off the uniqueness of the imaginary part in this step, where the unknown parameter (imaginary part) is the only one value enabling to simulate a BER equal to the measurement (synergy lidar – sunphotometer). The single-scattering albedo is also determined in this step.

7. The couple of indices retrieved is used together with the size distribution to calculate the scattering phase function, hence the correction factor of the nephelometer, as indicated in Sect. 2.1. A new scattering cross-section is therefore obtained, suggesting a recall to steps 4 to 6. Renewing this operation is not generally required since the correction factor is stable as of the first iteration.

Theoretically, an aerosol size distribution might present different indices of refraction corresponding to each mode in the distribution, whereas the measured scattering coefficient and the BER are global features of the aerosols at a given altitude. The convergence of a Mie code towards those two measured parameters can be seen as the resolution of a system with two equations and two unknown parameters (one real part and one imaginary part). Taking into account the different indices in each mode would assume the introduction of supplementary unknown values without additional constraint. In this case, the methodology would not permit to deduce a unique couple of solutions.

The merit of this technique is that it provides, for the first time, vertically resolved ACRI with such a high vertical resolution.

### 3.2 Influence of RH profile

To model the effect of water vapor on hydrophilic aerosols, we used the following relationships set up by Hänel (1976), describing aerosol growth and giving particle radius and refractive index for wet particles:

$$r_w = r \cdot \left( \frac{1 - RH}{1 - RH_{ref}} \right)^{-\epsilon} \quad (1)$$

$$n_w = n_{H_2O} + (n - n_{H_2O}) \cdot \left( \frac{r_w}{r} \right)^{-3} \quad (2)$$

The suffix  $w$  refers to wet conditions and RH is the relative humidity.  $r$  and  $n$  are the radius and the refractive index of aerosol particles, respectively, at  $RH = RH_{ref}$ , and  $n_{H_2O}$  is the refractive index of pure water. The coefficient  $\epsilon$  depends on the considered type of aerosol and is taken as 0.26 according to the chemical composition of Paris urban aerosol analyzed by Randriamiarisoa et al. (2006). That study had shown that the water soluble fraction was belonging to the accumulation mode indicating that the retrieved  $\epsilon$  represents hygroscopicity of the accumulation mode. The coarse mode particles did not appear hydrophilic. Hänel's laws essentially apply for RH larger than  $RH_{ref} = 55\%$  because of the existence of deliquescence point (Randriamiarisoa et al., 2006). Simulations of ACRI profiles, starting from the measurements at each altitude with a RH lower than 55%, have been realized in both Part 1 and Part 2. The calculations have been performed independently for each altitude.

## 4. Results

Vertical profiles of ACRI (real and imaginary parts) are given in Fig. 4 for 19, 20 and 31 July, 2000 over Paris area. Red solid lines represent the mean profile obtained during the ascending parts of the flight, shaded areas show their respective standard deviation and horizontal lines give the uncertainties determined by a Monte-Carlo method. Blue solid lines represent the mean profile obtained by a simulation combining dry in situ retrievals and relative humidity profiles, and horizontal lines show their respective uncertainty  $\Delta n_w$  computed by the following equation:

$$\Delta n_w = (n_w - n_{H_2O}) \cdot \left[ \left( \frac{\Delta n}{n - n_{H_2O}} \right)^2 + \left( \frac{3 \cdot \epsilon \cdot \Delta RH}{1 - RH} \right)^2 + \left( \frac{3 \cdot \epsilon \cdot \Delta RH}{1 - RH_{ref}} \right)^2 \right]^{0.5} \quad (3)$$

where  $\Delta n = 0.02 - i0.003$  is the uncertainty retrieved for the dry ACRI (Table 2) and  $\Delta RH \approx 0.5\%$  is the uncertainty on the measurements of relative humidity. Average values of ACRI, single-scattering albedo and RH over the entire



## 5. Discrimination verticale des couches d'aérosols

PBL, Part 1 or Part 2, with their corresponding standard deviations have been reported in Table 2.

Table 2: Mean values of ACRI ( $n_r - i \cdot n_i$ ), single-scattering albedo ( $\omega_0$ ) and relative humidity (RH) derived from aircraft measurements on 19, 20 and 31 July 2000 during ESQUIF program. The standard deviation is given in parenthesis. The uncertainties due to the retrieval procedure have been computed by a Monte-Carlo method and are also specified.

Date	3 days Air mass origin	Location	$n_r$	$n_i$	$\omega_0$	RH (%)
19/07/2000	Great-Britain London area	Part 1	1.479	0.020	0.871	51.6
		Upwind	(±0.014)	(±0.003)	(±0.016)	(±4.3)
		Inside the plume				
		Part 2	1.501	0.013	0.919	57.8
		Downwind	(±0.005)	(±0.002)	(±0.009)	(±4.5)
		Outside the plume				
		950 m	1.450	0.014	0.896	48.5
		Downwind	(±0.007)	(±0.002)	(±0.014)	(±2.1)
20/07/2000	Great Britain Cardiff area	Inside Paris plume				
		Upwind	1.518	0.020	0.883	51.8
		Inside the plume	(±0.015)	(±0.004)	(±0.019)	(±11.8)
		320 m	1.461	0.017	0.883	48.1
		Downwind	(±0.007)	(±0.002)	(±0.013)	(±2.5)
		Inside Paris plume				
		Part 1	1.483	0.014	0.913	61.1
		Downwind	(±0.015)	(±0.002)	(±0.015)	(±3.7)
31/07/2000	Atlantic Ocean	Inside the plume				
		Part 2	1.547	0.013	0.927	66.6
		Upwind	(±0.009)	(±0.002)	(±0.012)	(±5.8)
		Outside the plume				
		Uncertainties from Monte-Carlo method	0.020	0.003	0.015	0.5

### 4.1 19 July

The similarity in the profiles of both real and imaginary parts retrieved by the two methods (Fig. 4a and 4b) indicates that their modifications in the column are not mainly due to RH profile. Taking into account the uncertainties, the two profiles overlap up to the top of the PBL (1800 m), indicating that RH correction has only a slight influence for 19 July. RH seldom exceeds 60%, i.e. a bit over the deliquescence threshold, which accounts for the very small shift between the profiles over 1300 m. Aerosols are not very hygroscopic (Randriamiarisoa, 2006). Nevertheless, the two parts in the profile (below and above 950 m) must be set apart because both the real and the imaginary parts remain almost constant in each part of the profiles independently. The changes in aerosol properties between these two domains are indeed correlated to different source regions. Aerosols located upwind of Paris show smaller real part (1.48) but higher imaginary part (0.02) than particles located downwind of Paris but outside the Parisian plume (1.50 – i 0.013). An additional value of ACRI has been computed inside Paris plume close to 48.45 °N and 2.13 °E during the flight at 950 m MSL and plotted

on Fig. 4. We found  $1.45(\pm 0.01) - i 0.015(\pm 0.002)$ , thus presenting smaller values for real and imaginary parts than aerosols in Part 1 coming from England (Fig. 2a). The total number of particles is higher downwind of Paris but this noticeable increase (55%) is associated with a scattering coefficient that hardly evolves ( $\sim 0.15 \text{ km}^{-1}$ ) between the north and the south of Paris. That can be explained by the production of aerosols in the nucleation mode ( $\sim 0.04 \mu\text{m}$ ) over Paris area, which have only a few influence on the aerosol optical properties at 532 nm. An increasing amount of particles yields to a smaller mean value of the real part of ACRI. The fact that scattering properties do not vary suggests that the incoming air mass was characterized by a size distribution already dominated by the accumulation mode ( $\sim 0.12 \mu\text{m}$ ) as it could be expected for an atmospheric flow polluted by aerosols having aged for several days. That is in accordance with Randriamiarisoa et al. (2006) who showed that aerosols were mainly hydrophobic on 19 July: polluted air masses arriving over Paris are loaded with aged particles coming from Great Britain. The influence of the city of Paris producing aerosols in the nucleation mode is not therefore paramount for the scattering coefficient.

## 5. Discrimination verticale des couches d'aérosols

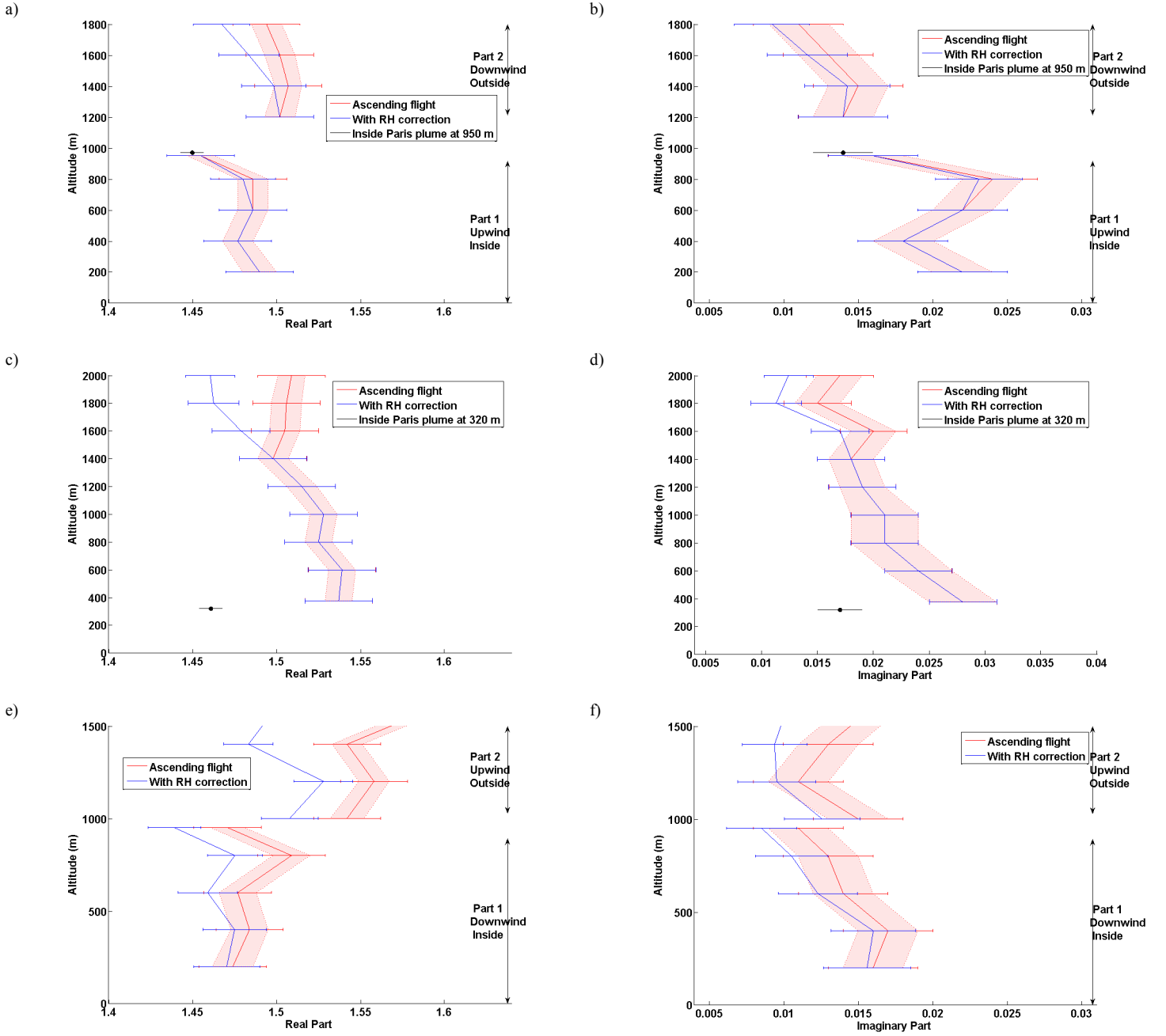


Figure 4: Vertical profiles of the complex refractive index (real (a, c and e) and imaginary (b, d and f) parts), on 19 (a, b), 20 (c, d) and 31 (e, f) July, 2000 over Paris area. Red solid lines represent the mean profile obtained during the ascending parts of the flight, shaded areas show their respective standard deviation and horizontal lines give the uncertainties determined by a Monte-Carlo method. Blue solid lines represent the mean profile obtained by a simulation combining in situ retrievals and relative humidity profiles, and horizontal lines show the uncertainties determined by a Monte-Carlo method.

### 4.2 20 July

On the 20 July, given that the deliquescence point has not been reached below 1500 m MSL, the influence of RH on ACRI profile cannot be remarked (Fig. 4c). Differences on the real part are observed near the top of the PBL since RH correction effect becomes important for RH values larger than 70%. This effect is

not significant on the imaginary part owing to the uncertainties. The main tendency observed on Fig. 4d is the regular decrease of the imaginary part as a function of the altitude. On 20 July, the evolution of the ACRI versus altitude has been retrieved upwind of Paris (north of Paris), given that no ascending flight has been performed in the south of Paris. According to the backward trajectory plotted on Fig. 2b, the optical properties of the aerosols coming from Great Britain are mainly located in the

upper part of the profiles. These highest altitudes are also associated with higher scattering coefficients ( $0.16 \text{ km}^{-1}$ ) than the area close to the surface ( $0.12 \text{ km}^{-1}$ ). The corresponding values of ACRI ( $1.50(\pm 0.01) - i 0.017(\pm 0.002)$ ) is in agreement with that derived for 19 July. The explanation of ACRI evolution with altitude for 19 July can also be provided for 20 July since air masses present quite similar origins: hydrophobic aerosols are advected in aged air masses from England. The observed differences between the lowest and the highest altitudes are however very weak and may be ascribed to the natural variability of the ACRI for the corresponding aged aerosol. As for 19 July, we calculated one value of ACRI downwind of the plume. The calculation performed at 320 m MSL close to  $48.12^\circ\text{N}$  and  $2.52^\circ\text{E}$  has given a mean value of  $1.46(\pm 0.01) - i 0.017(\pm 0.002)$ , also plotted on Fig. 4, corroborating the result of the previous day for the air mass downwind of Paris inside the plume.

### 4.3 31 July

As for the 19 July, profiles are divided in two parts on the 31 July (Sect. 2.2): Part 1 (lower part) and Part 2 (upper part). One should however notice that the results obtained at 800 m can be considered outside the plume (Part 2) since the plane was circumventing the urban area at this altitude to prepare a leg at 950 m (see Fig. 1e). The situation observed on 31 July is quite different. RH values are much higher than for 19 and 20 July. RH were found close to 55% at the surface but can reach 70 % in Part 1 (Fig. 1f), 75% in Part 2 and increase up to 80% at the top of the PBL. The discrepancies between the profiles of ACRI retrieved from dry measurements and the simulated profiles through RH measurements is obvious on both Part 1 and Part 2, and particularly in the vicinity of the top of the PBL (1500 m) when ACRI profile determined through RH profile quickly decreases. Moreover, a sharp contrast between the two parts can be remarked in Fig. 4e and the variability of the ACRI versus altitude is relevant since uncertainty bars do not overlap. Aerosols measured outside Paris plume have a larger scattering efficiency (higher real part of ACRI) than particles inside the plume ( $1.55$  in Part 2 compared to  $1.48$  in Part 1): outside the plume, aerosols are indeed farther from the sources and may also stem from a more rural origin. The air mass has circumvented Paris region by South side before coming onto the measurement site, thus flying over rural areas. When arriving over the Paris area, the incoming clean air mass is contaminated by pollution; fast aerosol aging processes are therefore being observed more distinctly than in the 19 and 20 July cases. In Part 1, aerosols located in the plume of Paris show small values of ACRI, as already observed for 19 and 20 July. Notwithstanding, these particles are accompanied by a significant amount of aerosols

produced by intense aircraft traffic influenced by Charles de Gaulle Airport. Those particles barely contribute to the overall aerosol optical properties in the visible spectral range. The retrieval of lidar profiles (see Sect. 5.4) for the 31 July points out the differences in aerosol extinction coefficient between the two parts: values have been established to be  $\sim 0.07 \text{ km}^{-1}$  in Part 1 within the Paris plume, compared to  $0.11 \text{ km}^{-1}$  outside the plume. Given that the shape of the size distribution within the plume (Table 1) associated with a high number of particles cannot explain such low extinction value relative to that determined outside the plume, we should consider that low values for the real part ( $1.46 - 1.48$ ) can ascertain a low extinction coefficient. In order to validate this result, we computed the ACRI over two legs at 950 m respectively located at  $48.75^\circ\text{N}$  (upwind of Paris) and  $48.96^\circ\text{N}$  (downwind of Paris). Results are plotted on Fig. 5. As expected, the real part is lower ( $1.42 - 1.47$ ) in the Paris plume, and show larger values ( $1.48 - 1.54$ ) when the aircraft is farther from Paris, i.e. for longitude lower than 1.7 or larger than 2.7. In addition, this figure shows that the averaged value downwind of Paris is a bit weak ( $1.44 \pm 0.02$ ) in comparison with the mean value retrieved before Paris ( $1.45 \pm 0.02$ ).

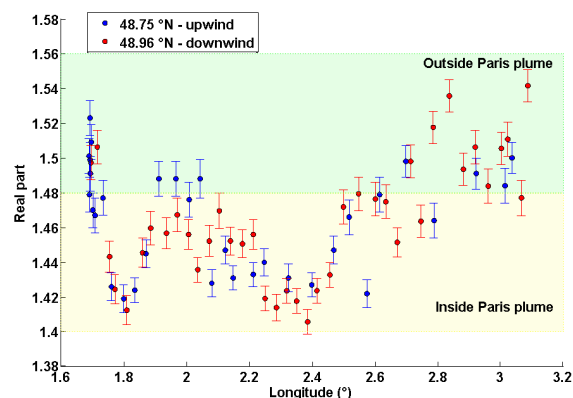


Figure 5: Evolution of the real part of the ACRI during the leg performed at 950 m as a function of longitude for 31 July, 2000. Blue dots correspond to measurements at the latitude of  $48.75^\circ\text{N}$  (upwind of Paris) and red dots to measurements at  $48.96^\circ\text{N}$  (downwind of Paris). Vertical bars show the uncertainties.

## 5. Discussion

### 5.1 Comparison to previous studies

Values determined in this study are coherent with those retrieved by other authors. Average values over the entire PBL with their corresponding standard deviations have been reported in Table 2. A good agreement is found between the mean value of ACRI, that is  $1.51(\pm 0.02) - i 0.017(\pm 0.003)$ , and several studies. It is for

## 5. Discrimination verticale des couches d'aérosols

Table 3: Values of ACRI retrieved from different studies.

Author	Measurements	Values of ACRI
Shettle and Fenn (1979)	Small urban aerosols at RH close to 50%	$1.56 - i 0.08$
Ebert (2004)	Urban aerosols	$1.6 (\pm 0.1) - i 0.04 (\pm 0.1)$
Ferrare et al. (1998)	Tropospheric aerosols in Oklahoma:	$1.4 - 1.5 (\pm 0.05)$
	Dry aerosols	
	Tropospheric aerosols in Oklahoma:	$1.37 - 1.4$
	Wet aerosols	
Müller et al. (2002)	Pollution plumes advected from the European continent out over the Atlantic Ocean	$1.56 (\pm 0.1) - i 0.009 (\pm \text{one order of magnitude})$
Redemann (2002)	Over Atlantic Ocean	$1.33-1.45 - i 0.001-0.008$
This study	Mean value over 19, 20 and 31 July 2000 in Paris area	$1.51 (\pm 0.02) - i 0.017 (\pm 0.003)$

instance in accordance with the results of Shettle and Fenn (1979) who found  $1.56-0.08i$  for small urban aerosols at RH close to 50% using different models and Ebert (2004) with an ACRI close to  $1.6 (\pm 0.1) - i 0.04 (\pm 0.02)$  at 532 nm for urban aerosols where high real parts were predominantly caused by the high abundance of metal oxide/hydroxide particles, the high imaginary parts by high abundances of soot.

Thanks to a Raman lidar, Ferrare et al. (1998) found that the real part was varying between 1.4 and 1.5 for dry aerosol ( $\pm 0.05$ ) and between 1.37 and 1.4 for wet aerosol, associated with a single-scattering albedo above  $0.94 \pm 0.1$ . Multiwavelength backscatter and extinction lidar measurements enabled Müller et al. (2002) to deduce a mean wavelength-independent ACRI of  $1.56-0.009i$ . But the real part of the ACRI had an uncertainty up to 0.1, the imaginary part could be estimated only with an accuracy of one order of magnitude, and in some cases for rather small particle effective radii, real and imaginary parts may be slightly overestimated. Redemann et al. (2000) combined lidar, sun photometer and particle sizers data to retrieve both real and imaginary parts in the atmospheric column over Atlantic Ocean that would provide the same backscatter signal in a forward calculation. Values of the estimated ACRI range from 1.33 to 1.45 for the real part and 0.001 to 0.008 for the imaginary part.

Table 3 summaries the results of those different approaches.

### 5.2 Comparison to AERONET measurements

The only available estimates of the aerosol refractive index for the time and location of this experiment are those given on the website of the AERONET network (Holben et al., 1998). The principle of such a comparison has been included in Fig.3. The average complex refractive index, over the entire month of July 2000, was calculated to be  $1.5 (\pm 0.05) - i 0.016 (\pm 0.0125)$  at 670 nm, after rejection of aberrant data with refractive indices close to that of water. The standard deviations, associated to the mean values, reflect both the temporal variability of the aerosol properties and the error on the retrieved parameters. The mean

value of ACRI retrieved in this study is thus very close to that provided by AERONET data.

In a more general context, it is important to assess the representativeness of our measurements. We used almucantar data obtained over Paris area for clear-sky conditions during summertime between 1999 and 2007. This method of retrieving the ACRI and single-scattering albedo uses the sun and sky radiance measurements acquired by the sun photometer when the instrument scans in the solar almucantar. In order to compare these results with the measurements presented in this study, we computed ACRI values and single-scattering albedos at 532 nm, assuming a linear approximation for ACRI between 438 and 669 nm and using the following equations for the single-scattering

albedo at 532 nm  $\omega_{0.532}$  :

$$\tau_{532} = \tau_{438} \cdot \left( \frac{532}{438} \right)^{-a} \quad \text{where } a = \frac{\ln\left(\frac{\tau_{669}}{\tau_{438}}\right)}{\ln\left(\frac{438}{669}\right)} \quad (4)$$

$$\omega_{0.532} = \frac{\tau_{532}^{extinction} - \tau_{532}^{absorption}}{\tau_{532}^{extinction}} \quad (5)$$

where  $\tau_i$  is the aerosol optical thickness at  $i$  nm for extinction or absorption respectively,  $a$  the Angström exponent (Angström, 1964).

The occurrences of the 532 nm single-scattering albedo, real part and imaginary part of the ACRI are given in Fig. 6 for clear-sky conditions during summertime between 1999 and 2007 in the Paris area. The mean values of single-scattering albedo retrieved in this study for 19, 20 and 31 July 2000 are located in the center of the Gaussian curve, indicating that such single-scattering albedo values between 0.89 and 0.92 are representative of the region in summer. Real parts also form a Gaussian curve but their values are slightly lower than our results. We should however notice that the mean real part from almucantar

## 5. Discrimination verticale des couches d'aérosols

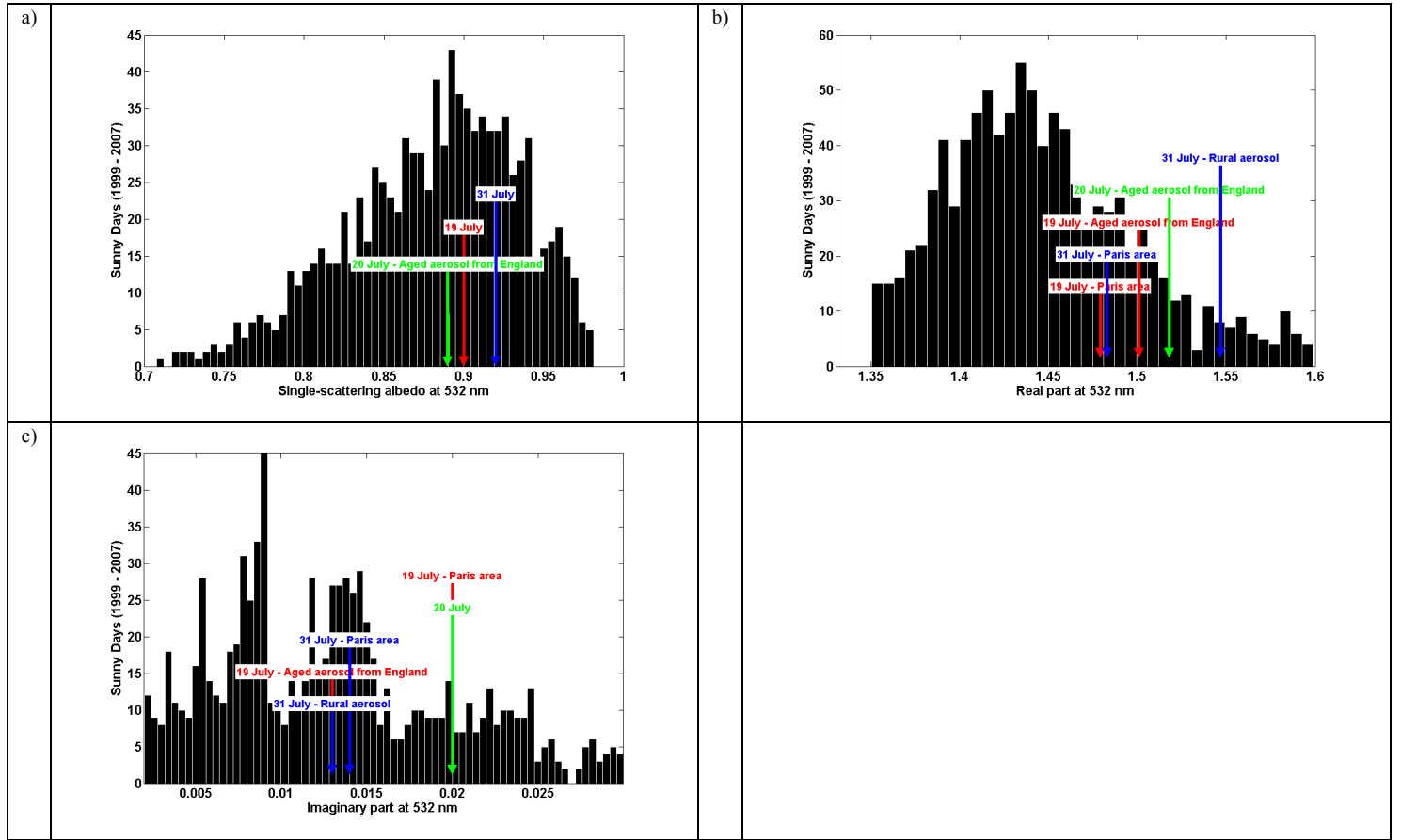


Figure 6: Histogram of the 532 nm single-scattering albedo (a), real part (b) and imaginary part (c) of the ACRI for clear-sky conditions during summertime between 1999 and 2007 in the Paris area and retrieved from AERONET Almucantar measurements. The mean values of the present study for 19, 20 and 31 July 2000 are indicated.

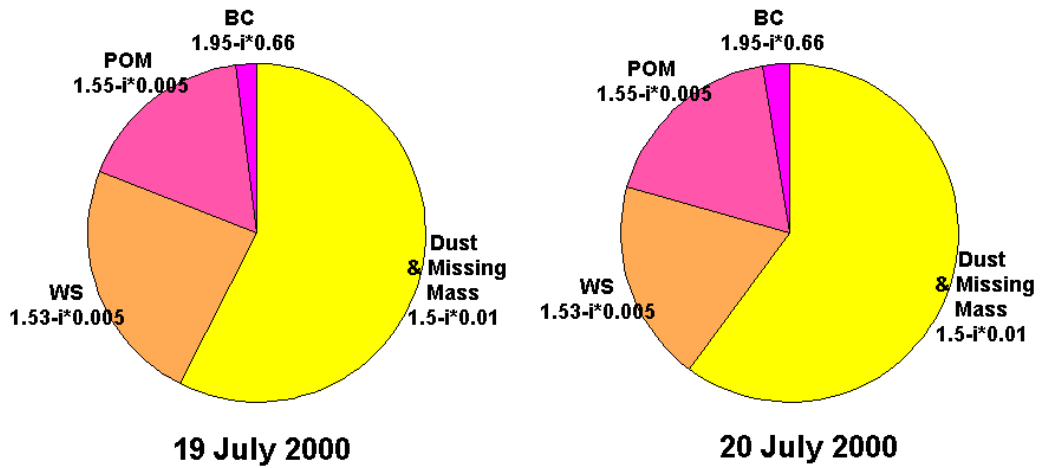


Figure 7: Mass apportionment and the corresponding values of ACRI derived from chemical analyses on filters for 19 and 20 July 2000. ACRI for black carbon (BC) are from Ackerman and Toon (1981), Faxvog and Roessler (1978), particulate organic matter (POM) from Sloane (1984), Holben et al. (1991), Anderson et al. (1996), Von Hoyningen et al. (1998), water soluble fraction (WS) from Sloane (1984), Volz (1973), Dust from d'Almeida et al. (1991).

## 5. Discrimination verticale des couches d'aérosols

Table 4: ACRI values for different states of mixture from chemical analyses on 19 and 20 July 2000 over Paris.

Day	Homogeneously internally mixed	Fine and coarse modes externally mixed Fine aerosols homogeneously internally mixed	Fine and coarse modes externally mixed Fine aerosols externally mixed
19 July	1.525 – i 0.020	1.558 – i 0.036	1.536 – i 0.015
20 July	1.527 – i 0.023	1.565 – i 0.049	1.543 – i 0.021

retrievals is 1.45 with an uncertainty of 0.04 (Dubovik et al., 2000), thus in agreement with the small real parts derived in Paris plume in Sect. 4: 1.46 – 1.48. The shape of the histogram for the imaginary parts is noisier but the mean values found for 19, 20 and 31 July are in the range of almucantar retrievals. Dubovik et al. (2000) indeed pointed out the high uncertainties on imaginary parts: 30% for strongly absorbing aerosols and 50% for weakly absorbing aerosols.

### 5.3 Comparison with chemical analyses

Chemical analyses on filters were performed for 19 and 20 July 2000 and results of the mass apportionment are given in Fig. 7, together with the corresponding values of ACRI derived from Chazette and Liousse (2001). Independently of the Mie calculations, we chemically derive the ACRI by using the known ACRI of individual constituents of aerosols (Fig.3). A simple mass-linear internal mixing rule of the aerosol chemical constituents has been examined for this study, as many authors (e.g. Horvath, 1998). This approach assumes that the particles are homogeneously internally mixed, and that each component contributes to scattering and absorption according to its mass fraction, as:

$$n = \frac{\sum_i m_i \cdot n_i}{\sum_i m_i} \quad (6)$$

where  $n$  is the calculated ACRI for the particle,  $m_i$  and  $n_i$  the mass concentration and refractive index, respectively, of each of the chemical compounds.

We found a mean value of 1.52 – i 0.02 for both 19 and 20 July, which is in good agreement with the optically-derived ACRI in this paper. We should however be careful on the comparison and discussion of the imaginary parts that are not as well known as their real counterparts, even if values are in accordance. In this study, we deduced values of ACRI by the combination of remote sensing and in situ techniques that are therefore representative of mixture with a composite ACRI, called “effective index”. We showed however that aerosols measured over Paris on 19 and 20 July were carried by aged air masses arriving from industrialized areas in England. Particles have had the time to gather chemical

components leading to aerosols constituted of carbonaceous core coated with non-absorbent material. Assessing the absorbing effects of such aerosols is delicate due to multiple-scattering inside the particles before the light reaches the absorbent core. The advantage of our optical retrievals is that they do not take into account the manner in which absorbing particles are represented in the aerosol mixture.

We performed a sensitivity study on the mixture state of the aerosols so as to assess the errors introduced when assuming that particles are internally mixed. The homogeneous internal mixture supposes that any portion of the particle would have the same composition as the particle itself. The first error in assuming that all particles are internally mixed is the mixing of both accumulation (fine) and coarse modes, whereas dust particles are generally independent. We have therefore considered the case of an external mixture of dusts and well-mixed fine particles and investigate through a Mie code the equivalent ACRI for the whole size distribution that gives the same scattering coefficient and single-scattering albedo as the external mixture. In comparison with the global homogeneous internal mixing, both real and imaginary parts of the refractive index dramatically increase by 20% and 100% respectively. The determination of the equivalent index is indeed driven by the accumulation mode, which is the most optically efficient, as shown by Randriamiarisoa et al. (2006). In this mode, refractive indices are mass averaged and the entire particles containing soot are assumed absorb since all waves passing through the particle have potential to be absorbed. That explains the overestimation in the role of soot and thus in refractive index values.

The second error concerns the mixing of black carbon within the fine part of size distribution. Although black carbon may be internally-mixed with other components in a particle, black carbon cannot be well-mixed since soot is irregularly shaped and solid, containing from 30-2000 graphitic spherules aggregated by collision during combustion (Katrinnak et al., 1993). Thus black carbon must be distinct and not a well-mixed component of the particle. We have therefore divided each particle belonging to the fine mode into two smaller particles: one is only constituted of black carbon and the second one is an homogeneous mixture of particulate organic matter and water soluble fraction. It is then possible to assess an ACRI for the fine

part providing the same scattering coefficient and single-scattering albedo as calculated through a Mie code. Hence we used as input parameter a size distribution with two modes (one for soot, one for organic matter and water soluble) whose modal radius were given by the mass fractions in the fine part. The same method applied to the external mixture of fine and coarse aerosols finally provides the equivalent ACRI for the entire aerosol size distribution. As expected, the influence of the black carbon amount on ACRI values is lower since soot represents very small particles that do not have a strong effect on optical efficiency. Table 4 summaries the different values of ACRI computed with chemical analyses considering the different states of mixture.

Jacobson (1999) reported that transmission electron microscopy indicates that the coating of elementary carbon is also a plausible physical configuration and his calculations showed that the absorption cross-sections of the core treatment were greater than those of elementary carbon particles externally mixed from water particles and less than those of well mixed elementary carbon – water particles. The actual ACRI values in our study are thus probably between the extrema given in Table 4.

### 5.4 Comparison with lidar profiles

Vertical extinction profiles can be retrieved from ACRI and size distributions determined in the atmospheric column. Aerosol extinction coefficient is indeed the product of the particle number concentrations by their scattering cross-section. Extinction coefficient profiles have been computed through a Mie model thanks to in situ measurements during flights and compared to lidar profiles, as shown on Fig. 3. A Monte-Carlo method has been developed to assess the uncertainties of ACRI, size distribution and RH on the aerosol scattering cross-sections. So as to clearly distinguish calculations inside from calculations outside the plume and to easily compare the profiles, lidar profiles from nadir pointing measurements performed at an altitude of ~4200 m MSL in the free troposphere are selected in latitude and longitude to be the nearest to in situ measurements (see Sect. 2.2). Results are given in Fig. 8. The general tendency of the profiles is well represented and within the dispersion of lidar values, particularly for 20 and 31 July, but the precise shape cannot be accurately reproduced. In particular the structure with two peaks appearing on 19 July right before the top of the PBL, which may be ascribed to a residual aerosol layer, misses on the calculated profile. That can be linked to a loss of information during the average of ACRI values every 200 m MSL.

The influence of RH on the extinction coefficient can also be discussed: on 19 July, the lidar signal is not sensitive to RH in the PBL because the simulated profile of extinction coefficient is

closer to lidar measurements without Hänel's corrections. Not surprisingly, RH profiles were found to increase from 45% at the surface to only 60% at the top of the PBL. Furthermore the fact that the profile without RH correction is the closest one in comparison with lidar-derived extinction profile could be an indication that for 19 July the aerosols in the accumulation mode were essentially hydrophobic. That result is in accordance with Randriamiarisoa et al. (2006).

On 20 July, Fig. 8b shows that the RH correction increases the aerosol extinction, while conversely decreasing the BER from 14 to 13.2 (Sect. 5.5). This indicates that aerosol backscattering increases more rapidly with RH correction than extinction. In comparison with 19 July, the effect of RH correction on the shape of aerosol extinction profile is more pronounced, meaning that varying the ACRI and size distribution of the dry particles has a great impact on the magnitude of aerosol extinction. However, the change in aerosol extinction with altitude is slightly altered, and not in agreement with lidar-derived extinction. RH correction is thus not appropriate on this day. RH profiles were found to increase from 35% at the surface to 70% at the top of the PBL. The fact that a sharp maximum has not been observed on the aerosol extinction coefficient at the top of the PBL for 20 July suggests that aerosols in the accumulation mode are hydrophobic under 70%.

As in the case of the previous days, the profile of aerosol extinction derived from the PCASP and the nephelometer measurements agree well with those measured by the lidar on 31 July. Contrary to 19 and 20 July cases, the extinction profile after Hänel's correction is in better accordance with the lidar-derived extinction coefficient. Variations in the atmospheric column may therefore be mainly related to aerosol size growth with increasing RH. It is confirmed by Chazette et al. (2005) who showed that aerosols carried by South winds on 31 July were young and hydrophilic thanks to lidar measurements noting that extinction coefficients were higher in altitude without any modification in the size distribution.

These comparisons underline the ability of our method to reproduce the evolution of aerosol properties in the PBL and, in spite of sharp variations in the atmospheric column, enable to validate the closure study previously presented.

### 5.5 Discussion on the uncertainties

We can firstly notice that we had chosen  $n_i \leq 0.05$  because anthropogenic aerosols from automobile traffic do not present higher imaginary parts. AERONET retrievals discussed in Sect 5.2 and chemical analyses reported in Sect. 5.3 have finally shown that  $n_i$  was always lower than 0.025 in July 2000 over

## 5. Discrimination verticale des couches d'aérosols

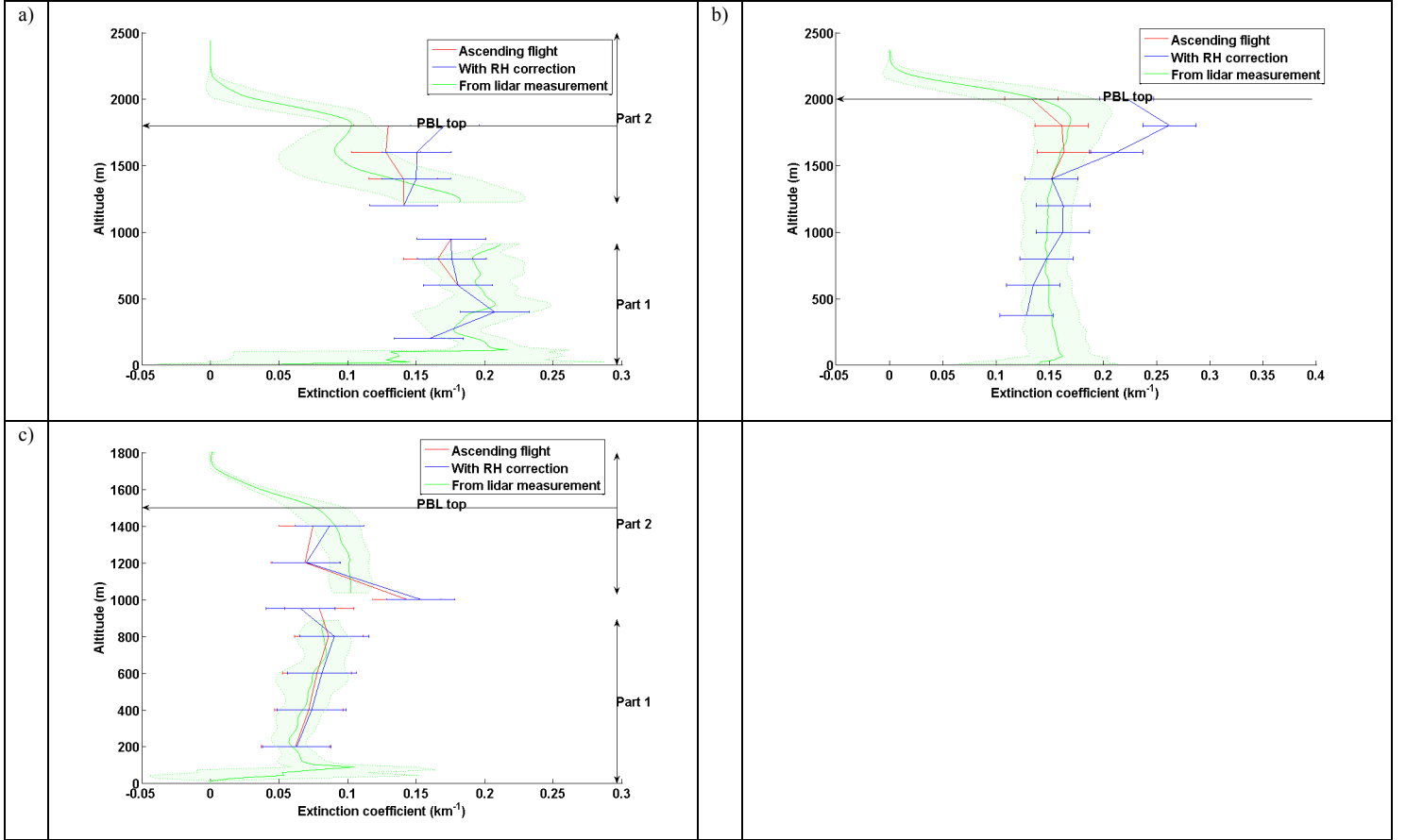


Figure 8: Vertical profiles of extinction coefficient on 19 (a), 20 (b) and 31 (c) July, 2000 over Paris area. Red solid lines represent the mean profile obtained during the ascending part of the flight and horizontal lines give the uncertainties determined by a Monte-Carlo method. Blue solid lines represent the mean profile obtained by a simulation combining in situ retrievals and relative humidity profiles together with their uncertainties. Green solid line represents the mean lidar profile obtained on the leg located over the ascending parts of the flight; shaded areas show the standard deviation on lidar measurements.

Paris area. The assumption we made  $n_i \leq 0.05$  is therefore not forcing at all.

In Sect. 4, we have showed that profiles of real and imaginary parts might present very different shapes. The influence of the real part in the determination of the imaginary one has been investigated through a sensitivity analysis on the real part. As a matter of fact, an absolute error of 0.02 on the real part, which is the error calculated on our retrievals with the Monte Carlo method (Table 2), triggers off only a slight variation on the imaginary part of 0.001 in comparison with the total error of 0.003 retrieved from the Monte Carlo method (Table 2). The impact of the real part on the imaginary part of the ACRI is thus not dominating. Variations of the imaginary part in the atmospheric column can therefore be more ascribed to changes in size distribution and BER than to variations in the real part profile.

On the other hand, BER has been supposed constant with altitude for the calculation of the imaginary part and its determination ( $0.014 \pm 0.0003$ ) has required a synergy between

lidar and sun photometer measurements according to the optical thicknesses. A BER profile taking into account RH can be retrieved with Equations 1 and 2 through a Mie code (Fig. 3). We noticed that this profile is almost constant with altitude, no noticeable peak being observed as a function of height. Mean values of  $0.0137 \pm 0.0003$ ,  $0.0132 \pm 0.0006$  and  $0.0140 \pm 0.0006$  for 19, 20 and 31 July respectively have been found, suggesting that RH correction do not introduce any bias in the calculations because uncertainties overlap in all cases. The BER calculated after RH correction is very close to the “input BER” used to invert lidar data. This result is consistent with that reported by de Leeuw et al (1986) and Takamura and Sasano (1987) who also found that the dependence of BER on relative humidity was small. In addition it is in accordance with a previous study carried out on Paris city hall place (Raut and Chazette, 2007) showing that the BER at 355 nm and 532 nm in Paris remained almost constant (uncertainty of  $5.10^{-4}$  only) for RH comprised between 40% and 80%. The determination of the BER thanks to the combination lidar/sunphotometer turns out to be a prevailing



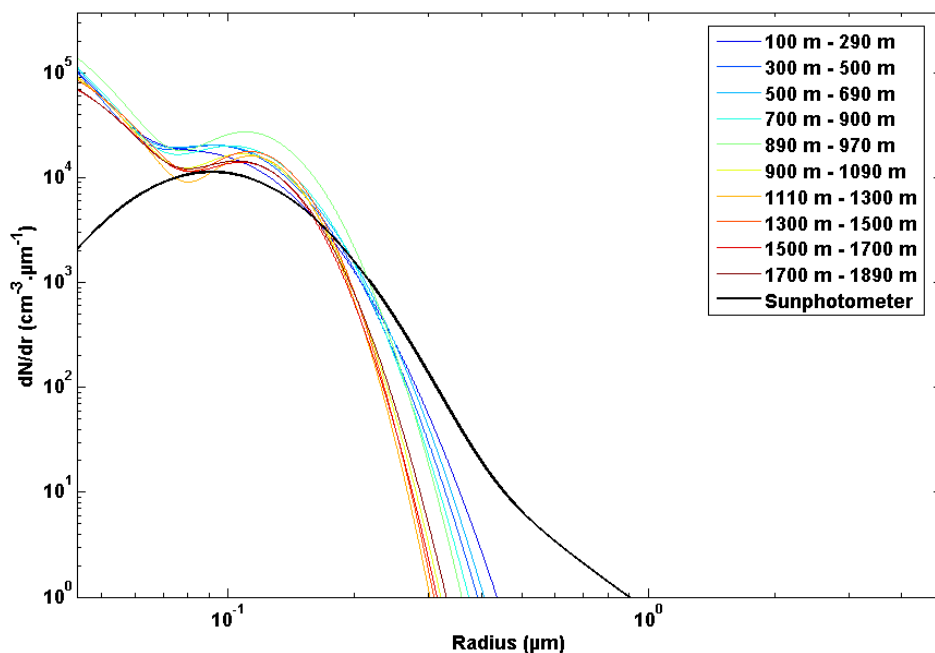


Figure 9: Aerosol number size distribution derived from solar almucantar measurements acquired by the sun photometer over Paris area (AERONET) and size distributions measured by the PCASP at each altitude level on 31 July 2000.

actor governing the synergy between remote sensing and in situ measurements.

Nevertheless, we have to make sure that the agreement between simulated extinction profiles and lidar-derived extinction coefficient profiles really reveals the variations of physical properties in the PBL and are not affected by the “calibration” of the lidar on the sun photometer. We therefore calculated the BER independently of lidar measurements: AERONET size distributions are derived from solar almucantar data acquired over Paris area to assess the BER during this period. This step of the discussion has been included in Fig. 3. Since the retrieval algorithm produces volume size distribution integrated on the atmospheric column ( $\mu\text{m}^3/\mu\text{m}^2$ ), we used the mixed layer heights over this period, derived from lidar data, to convert the size distribution in true concentration units. The height of the PBL for each day was given in Sect. 2.2. Volume size distributions have been converted to number size distributions and are shown in Fig. 9 for 31 July, together with size distributions measured by the PCASP. Equivalent size distributions have been observed for 19 and 20 July. It can be useful to compare those size distributions. Number size distributions present two modes centered at 0.1 and 1.2  $\mu\text{m}$ ; the first mode is highly predominant with 99% of the total number of particles and is optically efficient. The first modal radius from AERONET is in accordance with the accumulation mode measured with the PCASP and presented on Table 1 with a smaller dispersion. It is now well known that AERONET is not

able to manage the detection of very small particles with a radius lower than 50 nm, whereas the sampling of coarse aerosols is a limitation of the PCASP. Such size distributions have been used as input in a Mie model, together with ACRI values retrieved from almucantar measurements (Sect. 5.2), so as to derive the BER given by the sun photometer alone. We finally found  $0.0135 \pm 0.0009$ , which is slightly lower than the BER used in this study ( $0.014 \pm 0.0003$ ) but the error bars overlap. The fine mode measured by the PCASP and coarse mode measured in AERONET stations have therefore a negligible influence on an optical ratio such as BER ( $0.0135 \pm 0.0009$ ). These results indicate that the value of BER used to invert lidar measurements can be determined from a set of almucantar measurements alone, instead of having recourse to the synergy between lidar and sun photometer measurements of optical thicknesses. It guarantees the independence of the steps in the closure study and validates our method when retrieving simulated aerosol extinction coefficients on a vertical scale in agreement with lidar-derived extinction profiles.

## 6. Conclusion

We have presented an assessment of the aerosol complex refractive index using the synergy between lidar, sunphotometer and in situ measurements during flights over Paris area in July 2000. The merit of this technique is that it provides, for the first time, vertically resolved ACRI in the PBL with a high vertical

resolution of 200 m. We showed that the main variations in the atmospheric column have to be ascribed to the geographic origin, the source and the history of the air masses carrying aerosols. Aerosols produced over Paris area have been found to present smaller values of the real part of the ACRI (1.46 – 1.48) than aged particles advected from Great-Britain (1.48 – 1.50) measured on 19 and 20 July upon arrival over Paris region and than rural aerosols over Paris area ( $>1.50$ ) sampled on 31 July. But no significant tendency has been observed for the imaginary part. A good agreement has been demonstrated between the simulated extinction profiles based on the knowledge of ACRI and lidar-derived extinction profiles. Lidar reveals to be a powerful tool to constrain closure studies in the lower and

middle troposphere so as to retrieve aerosol optical and physical properties, and particularly the ACRI. A modification of this crucial parameter governs changes in radiative properties of the PBL. The importance of parameter sets of physical particle properties on a vertical scale for the assessment of climate forcing by anthropogenically produced particles is highlighted by Intergovernmental Panel on Climate Change (IPCC 2007).

### 7. Acknowledgments

The airborne ESQUIF experiment was supported by the Institut National des Sciences de l'Univers (INSU) and the Commissariat à l'Energie Atomique.

## 5.4 Conclusions

### 5.4.1 Synthèse

L'utilisation combinée de mesures in situ et de télédétection au sein du programme ESQUIF et présentée dans l'article de Raut and Chazette (2008a) a confirmé tout son intérêt méthodologique pour la restitution de l'ACRI dans la basse et moyenne troposphère en environnement urbain. La stratégie expérimentale a été appliquée au sein d'une plateforme aéroportée : les mesures lidar ont donc été complétées efficacement par des mesures in situ à l'intérieur de la couche de mélange. Cela a permis de caractériser l'aérosol de façon résolue dans la colonne d'atmosphère de la CLA urbaine et périurbaine. Avec une très bonne résolution verticale (200 m), les profils d'ACRI ont montré des variations significatives dans la colonne d'air. Les mesures en surface en particulier, qui permettent de mieux analyser des processus physico-chimiques et de servir de points de contrainte dans le temps, ne sont pas toujours représentatives de ce qui se passe au-dessus. Cette décorrélation des signatures optiques dans la colonne, qui a été mise en évidence grâce aux mesures lidar, a été confirmée par les mesures d'ACRI. Elle a révélé l'importance de la provenance des masses d'air qui arrivent en région parisienne dans l'évolution des propriétés des aérosols. La pollution en Ile-de-France est en effet la superposition d'émissions locales et de pollution transportée depuis des régions éloignées comme l'Océan Atlantique ou l'Europe du Nord. Les études en synergie de cette pollution urbaine et périurbaine ont été conduites sur des périodes d'observation courtes mais qui ont permis de travailler dans des conditions météorologiques variées et d'échantillonner des origines de masses d'air représentatives. Les propriétés structurales, chimiques et optiques des aérosols qu'elles ont permis de mettre en évidence dépendent de la source géographique et de l'histoire des masses d'air et sont caractérisées par les valeurs d'ACRI et d'albédo de simple diffusion recensées dans le Tableau 5.1.

Tableau 5.1 : Caractéristiques (ACRI et  $\omega_0$ ) de l'aérosol observé en région parisienne entre les 19 et 31 juillet 2000

Localisation	Caractéristiques	$n_r$	$n_i$	$\omega_0$
En dehors du panache	loin des sources aérosol rural	1.55	0.013	0.93
En dehors du panache	aérosol vieilli advecté du Nord de l'Europe	1.50-1.52	0.013-0.020	0.88-0.92
Dans le panache	aérosol jeune émis sur Paris, surtout dans le mode de nucléation	1.44-1.48	0.014-0.020	0.87-0.91
Région parisienne	moyenne	1.51 ( $\pm 0.02$ )	0.017 ( $\pm 0.003$ )	0.89-0.92
Région parisienne	AERONET (670 nm)	1.50 ( $\pm 0.05$ )	0.017 ( $\pm 0.012$ )	0.88 $\pm$ 0.05
Région parisienne	en surface (chimie)	1.52	0.02	-

### 5.4.2 Influence de la masse d'air sur les propriétés optiques et microphysiques de l'aérosol

La majorité des particules produites directement sur Paris (principalement par la circulation automobile, mais aussi aux abords des grands aéroports) sont situées dans le mode de nucléation (0.04  $\mu\text{m}$ ). Ces particules n'ont donc pas beaucoup d'impact sur les propriétés optiques de l'aérosol dans le domaine spectral visible, contrairement aux aérosols du mode

d'accumulation d'efficacité optique largement supérieure dans la couche de mélange. L'influence du vieillissement sur la partie réelle de l'ACRI, donc sur la capacité de diffusion de l'aérosol, a été soulignée. Elle peut indiquer la présence additionnelle de sels autour des particules. D'après le Tableau 5.1, dans le cas où les masses d'air arrivant sur Paris sont déjà polluées, c'est-à-dire que les aérosols ont déjà vieilli après avoir été émis par une région industrielle ou une autre grande ville, le processus de vieillissement des particules n'est pas flagrant : un écart de seulement  $\sim 0.04$  est observé sur la partie réelle. L'évolution des propriétés optiques de l'aérosol apparaît en revanche de manière évidente quand la masse d'air atteignant la région parisienne a une trajectoire principalement d'origine océanique donc plutôt propre (différence de  $\sim 0.07$  sur la partie réelle).

Il est aussi important de souligner que l'on ne constate pas de différence notable dans la partie imaginaire de l'ACRI ni dans l'albédo de simple diffusion entre les aérosols du panache parisien et ceux mesurés en dehors de ce panache (Fig. 5.3). Lors de vols à altitude constante ( $\sim 950$  m), la partie imaginaire (Fig. 5.3a) a peu évolué entre les passages à l'intérieur et à l'extérieur du panache. Seule une légère tendance à des valeurs plus élevées a pu être notée à l'extérieur du panache, sous le vent de Paris (latitude de  $48.96^\circ\text{N}$  avec des longitudes supérieures à  $2.80^\circ\text{E}$ ). De la même façon, l'albédo de simple diffusion (Fig. 5.3b) présente une évolution remarquablement stable entre les zones dans le panache parisien et les régions à l'extérieur de celui-ci. Cela confirme le fait que l'albédo de simple diffusion est majoritairement contrôlé par l'absorption et peut servir de très bonne contrainte à la restitution de la partie imaginaire de l'ACRI (Sect. 4.6).

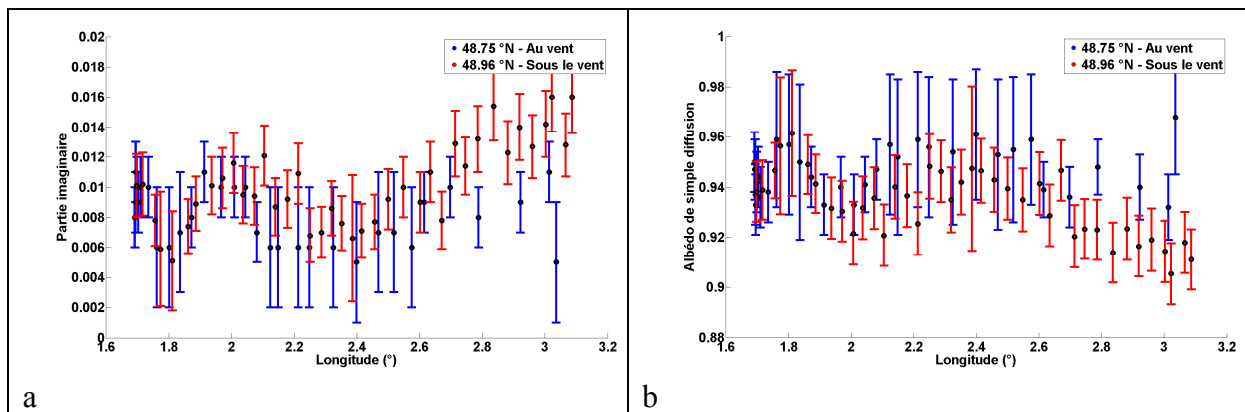


Fig. 5.3 : Evolution de la partie imaginaire (a) et de l'albédo de simple diffusion (b) pendant la partie du vol réalisée à l'altitude constante de 950 m en fonction de la longitude le 31 juillet 2000. Les points bleus correspondent à des mesures effectuées à la latitude de  $48.75^\circ\text{N}$  (amont de Paris) et les points rouges à des mesures à la latitude de  $48.96^\circ\text{N}$  (aval de Paris). Les bandes verticales représentent les incertitudes.

### 5.4.3 Rôle de l'état de mélange des aérosols

De manière à mieux interpréter les mesures optiques et granulométriques, la composition chimique des aérosols mesurée en surface a été utilisée. L'état de mélange des particules joue un rôle considérable sur les propriétés de diffusion et d'absorption du rayonnement par les aérosols. L'impact est d'environ 20 % sur la partie réelle de l'ACRI et de 100 % sur sa partie imaginaire. La séparation entre les modes fin et grossier renforce notamment le rôle du carbone suie car BC représente une proportion plus grande dans le mode d'accumulation que dans l'aérosol global en mélange interne. Les propriétés fortement diffusantes et absorbantes

de BC sont donc favorisées, toutes les ondes traversant la particule optiquement efficace ayant le potentiel d'être absorbées par la suie. En revanche, les parties imaginaires apparaissent plus faibles sous l'hypothèse d'un mélange externe. L'influence de BC est alors très atténuée puisque les particules de suie très petites n'ont que peu d'impact sur les propriétés optiques de la population totale des aérosols. A partir des résultats précédents, les profils verticaux de la partie réelle, présentant des valeurs plus faibles dans le panache de pollution parisienne, fournissent une indication sur l'état de mélange de l'aérosol. Les plus fortes concentrations de BC avec des distributions en taille à peu près similaires à celles obtenues hors panache auraient laissé penser des valeurs de partie réelle plus fortes dans le panache. Cette contradiction peut s'expliquer par un état de mélange externe des aérosols du panache. A l'inverse les aérosols hors du panache d'origine rurale ont eu le temps de vieillir donc de condenser à leur surface des organiques et des composés solubles, un tel mélange interne conduisant à une augmentation de la partie réelle de l'indice de réfraction. Ce résultat important est cohérent avec des études précédentes. Jacobson (2001) a estimé que cinq jours étaient nécessaires pour que les particules de carbone suie se fondent dans des mélanges comprenant Dust, SS et WS. Ce résultat est également en accord avec les observations in situ de Covert and Heintzenberg (1984), indiquant une forte proportion de mélange externe pour les particules en zone urbaine. Plus récemment Hasegawa and Ohta (2002) ont noté seulement 5 à 7% de mélange interne de BC sur la ville de Sapporo City au Japon. La même conclusion a encore été observée par Mallet et al. (2004) suggérant de fortes différences sur l'état de mélange entre les zones urbaines (mélange externe principalement) et rurales (mélange interne principalement).

### 5.4.4 Influence de l'hygroscopicité

Un très bon accord a également été trouvé entre les coefficients d'extinction simulés par la synergie expérimentale et ceux déterminés par l'inversion des signaux lidar. Des écarts apparaissent toutefois lorsque les variations brutales des coefficients d'extinction dans la colonne nécessiteraient une échelle de détection inférieure à 200 m. La connaissance de la distribution en taille résolue en altitude permet par conséquent d'attribuer les variations des coefficients d'extinction dans la colonne atmosphérique, en particulier au niveau du sommet de la CLA, à deux causes possibles : des modifications dans les ACRI par des advections de masses d'air d'origines différentes ou des fluctuations dans le taux d'humidité relative. Un des points importants de l'article de Raut and Chazette (2008a) est d'avoir mis en évidence des variations d'hygroscopicité des particules dans la colonne d'air grâce à la connaissance des profils d'ACRI. Conformément aux résultats qui avaient été présentés par Randriamiarisoa (2006) à partir de mesures chimiques, l'humidité relative influence considérablement l'évolution des propriétés optiques de l'aérosol essentiellement au sein du mode d'accumulation en fonction de l'origine et de la trajectoire des masses d'air qui parviennent en région parisienne. Les propriétés hydrophiles des aérosols mesurés au-dessus de Paris sont plus ou moins prononcées mais, de manière générale, les aérosols contenus dans les masses d'air d'origine océanique sont beaucoup plus hygroscopiques que les aérosols âgés issus de régions sources industrialisées comme l'Angleterre.

### 5.4.5 Réponses aux problématiques de qualité de l'air et de transfert radiatif

En mettant en évidence l'importance de la provenance des masses d'air qui arrivent en région parisienne dans l'évolution des propriétés des aérosols, les travaux que nous avons menés

répondent naturellement aux problématiques liées à la pollution atmosphérique. La connaissance de l'influence de la superposition, du mélange d'émissions locales et de pollution transfrontalière depuis des régions éloignées devrait à terme être intégrée dans les outils de modélisation à des fins de diagnostic et de prévision de la pollution dans les grandes villes. La généralisation à l'échelle synoptique, qui est celle à laquelle fonctionnent les modèles de chimie transport, devra s'effectuer à partir de paramétrisations simplifiées. Ces paramétrisations devront mieux prendre en compte les possibilités de mélange de l'aérosol (Tombette, 2007).

L'apport de la synergie instrumentale pour la modélisation au niveau radiatif a également été évalué au cours de ce travail de thèse. La principale hypothèse de l'approche précédente est d'avoir supposé un *BER* constant pour inverser les profils lidar. Les études de sensibilité menées ont montré que la méthode de restitution des indices n'introduisait pas de biais sur cette hypothèse et que le *BER* était peu sensible à l'humidité relative pour  $RH < 80\%$ . D'autre part, le *BER* est cohérent avec celui calculé de manière indépendante à partir des seules données photométriques (inversions Almucantar). Néanmoins, la méthode gagnerait en précision et en interprétation des résultats en prenant en compte des profils verticaux de *BER*. Plusieurs techniques permettent d'atteindre cet objectif (Set. 3.3.7.2) : méthodes two-stream (Kunz, 1987 ; Hughes and Paulson, 1988) pour un bon *SNR* (Sect. 3.3.8), méthode tomographique pour une inversion lidar multiangulaire (Sicard et al., 2002), inversion Raman (Ansmann, 1990), lidar multi-longueurs d'onde (Müller et al., 1999), combinaison de tirs lidar à l'horizontale et en visée nadir (Chazette et al., 2007a). Cette dernière approche sera utilisée dans le Chapitre 6. La connaissance précise des propriétés optiques et microphysiques dans chacune des couches d'aérosols est indispensable pour le calcul des flux radiatifs et des taux d'échauffement dans la colonne atmosphérique. C'est l'objet du Chapitre 6.

## Chapitre 6

---

# 6 Application: Impacts direct et semi-direct sur les bilans énergétiques en zone sahélienne (AMMA)

## 6.1 Principe

---

Les études de fermeture mises en place lors des stratégies expérimentales développées dans les campagnes ESQUIF et LISAIR ont permis de répondre à des problématiques de pollution atmosphérique à l'échelle de la rue ou de la région. Ces études ont participé à l'amélioration de notre compréhension de l'évolution des propriétés physico-chimiques et optiques des aérosols, en particulier de leur indice complexe de réfraction et leur albédo de simple diffusion. Elles doivent également nous aider à mieux comprendre les interactions de ces particules avec les nuages, le rayonnement et le climat. Les modèles actuels tenant compte des aérosols dans le système climatique ne disposent pas en effet d'une connaissance assez précise des propriétés physico-chimiques et optiques des aérosols. Les interactions aérosols – rayonnement, qui sont à l'origine des effets direct et semi-direct, sont gouvernées par les propriétés optiques des aérosols et leur évolution dynamique et physico-chimique. Les processus d'interaction aérosols - nuages, qui conditionnent l'effet indirect, dépendent des propriétés chimiques (composition, fraction soluble, taille) et physiques (optiques) des aérosols, et de leur état de mélange qui modifie ces mêmes propriétés.

Certaines études stipulent que le forçage de l'ensemble des aérosols est significatif et comparable à celui des gaz à effet de serre mais de signe opposé (Penner et al., 1994). Dans l'état actuel des connaissances, ce raisonnement donne une vision simpliste voire inexacte de l'impact climatique des aérosols. En effet, la distribution hétérogène des aérosols sur le globe implique que le forçage de ceux-ci n'équilibre pas aussi simplement celui des gaz à effet de serre (Penner et al., 2001 ; Ramaswamy et al., 2001). De plus, selon le type des aérosols, leurs impacts radiatifs peuvent être positifs ou négatifs contrairement aux gaz à effet de serre qui apportent tous un forçage positif (IPCC, 2007). Leurs propriétés diffèrent avec leur nature et peuvent donner des résultats opposés selon qu'ils diffusent (refroidissement) ou absorbent (réchauffement). C'est pourquoi il est difficile encore aujourd'hui de quantifier avec confiance les impacts radiatifs des aérosols naturels et anthropiques, leurs rétroactions aux échelles régionales et globales sur la dynamique atmosphérique et sur le cycle de l'eau (formation nuageuse et précipitations).

Dans ce chapitre, nous cherchons à approfondir la connaissance des processus des interactions aérosols – rayonnement en particulier lorsque l'on est en présence de structures multicouches de particules possédant des propriétés variables avec l'altitude. Les études présentées au

Chapitre 5 ont démontré qu'il était envisageable de caractériser l'aérosol par ses propriétés optiques et microphysiques résolues en altitude. Nous cherchons à étendre cette méthodologie à l'étude de l'impact radiatif direct des particules observées durant la campagne AMMA et de ses rétroactions potentielles. Cette campagne, réalisée en Afrique et décrite dans la suite, permet de mettre en évidence diverses couches chargées en particules qui possèdent des sources d'émission, des caractéristiques de transport et de dépôt, des distributions verticales, des états de mélange et de vieillissement très différentes. Afin de pouvoir profiter de toutes les spécificités des différents types de mesures et d'optimiser au maximum les informations résultantes, la stratégie de synergie expérimentale a été privilégiée pendant la campagne AMMA.

## 6.2 La campagne AMMA

---

### 6.2.1 Le cadre général de la campagne AMMA

Le projet AMMA (Analyses Multidisciplinaires de la Mousson Africaine) est un projet international dont l'objectif est d'améliorer notre connaissance et notre compréhension de la mousson de l'Afrique de l'Ouest (MAO), ainsi que d'étudier sa variabilité de l'échelle journalière à l'échelle interannuelle et, au-delà, aux échelles décennales. Il s'agit de travailler depuis l'échelle des processus élémentaires contrôlant la mousson jusqu'aux échelles auxquelles la MOA influence, au-delà de l'Afrique de l'Ouest, la dynamique et la composition de l'atmosphère (Redelsperger et al., 2006). L'objectif sociétal consiste à produire les connaissances nécessaires pour relier la variabilité du climat aux problèmes de santé, de ressources en eau et de sécurité alimentaire de l'Afrique de l'Ouest, et à définir des stratégies de surveillance appropriées. La mousson africaine a des impacts sur le climat de l'ensemble du système Terre. La circulation atmosphérique planétaire est affectée par l'énergie de chaleur latente libérée par la convection profonde au-dessus de l'Afrique (Redelsperger et al., 2006). Le lien entre mousson africaine et climat planétaire vaut aussi pour la chimie atmosphérique.

### 6.2.2 Importance des aérosols en Afrique de l'Ouest

L'Afrique représente une source importante d'émissions naturelles et anthropiques de composés gazeux et particulaires. L'Afrique est en effet la source principale d'aérosols atmosphériques dans le monde. Le Sahara en Afrique de l'Ouest est le plus vaste désert et se comporte comme la source la plus importante de particules minérales au monde. Les conditions météorologiques à grande échelle impliquent que la plupart des événements intenses de poussières désertiques en région saharienne et sahélienne sont fréquemment générés au printemps (Marticorena et al., 1997). La production de poussières désertiques est cependant significative tout au long de l'année Fig. 6.1.



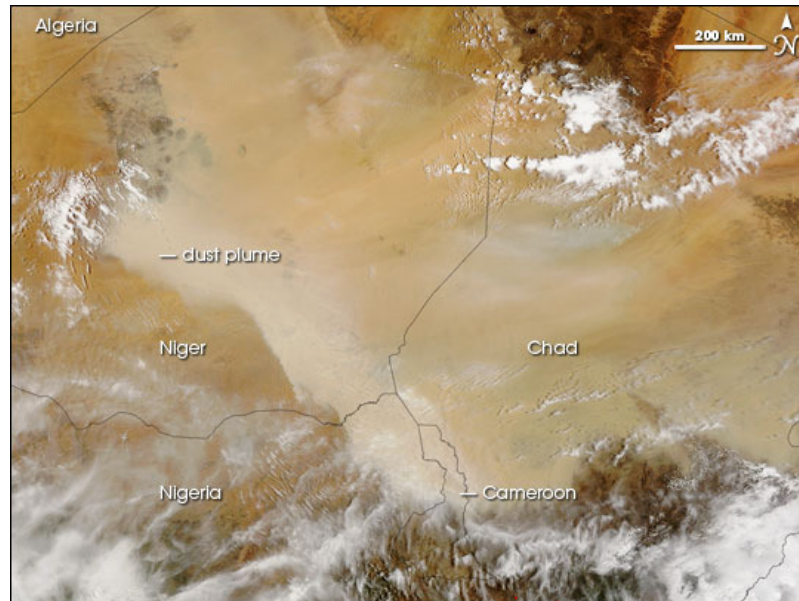


Fig. 6.1 : Image réalisée par l'instrument MODIS sur TERRA le 10 mai 2006 permettant l'identification d'un panache de poussières désertiques du Sahara se déplaçant vers l'Ouest à travers le Niger, le Nigeria, le Cameroun et le Tchad.

De plus, le brûlis de résidus agricoles en région sahélienne pendant la saison sèche signifie que l'Afrique de l'Ouest est une source importante d'aérosols de fumée de feux de biomasse. Les fluctuations des émissions d'aérosols de feux de biomasse pendant l'écobuage des terres en Afrique suivent un cycle saisonnier bien déterminé en raison des précipitations associées aux variations saisonnières de la zone de convergence intertropicale (ITCZ), comme indiqué par Swap et al. (2002). Par conséquent, le maximum d'émissions d'aérosols anthropiques provenant de la combustion de biomasse des régions sub-sahéliennes dans le Nord de l'Afrique est observé durant les mois de décembre à février. En revanche, très peu de brûlis de biomasse ne sont pratiqués entre août et novembre. Une carte de l'activité des feux détectés par MODIS en 2006 au-dessus du continent africain est représentée sur la Fig. 6.2.

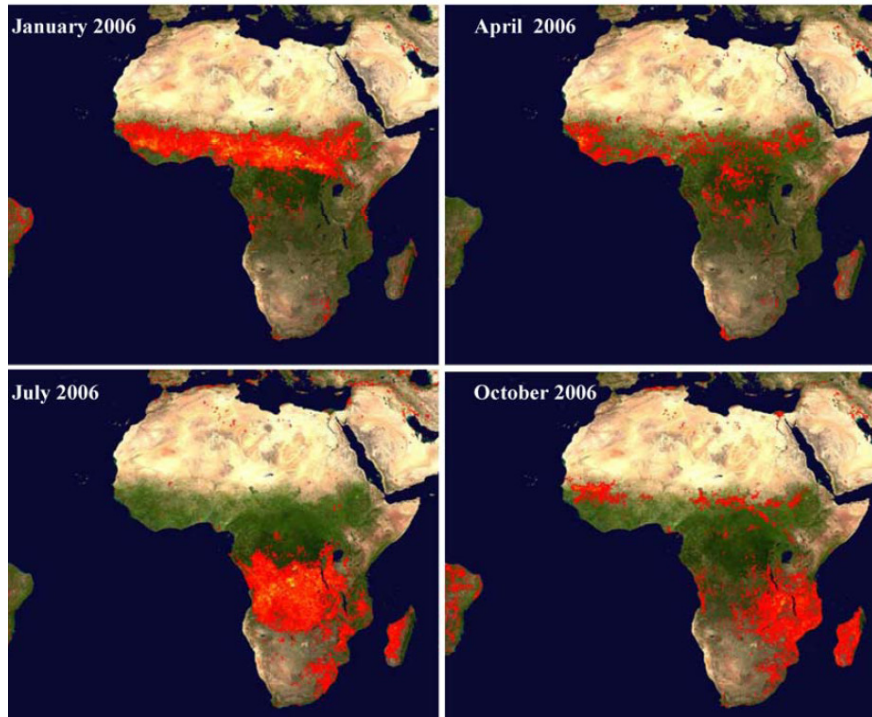


Fig. 6.2 : Détection des feux par MODIS représentant la saisonnalité des épisodes de combustion de biomasse au-dessus du continent africain en 2006. Les quatre images présentent dans chacun des cas des moyennes sur dix jours effectuées en milieu du mois correspondant. D'après Haywood et al. (2008).

Les poussières minérales sont émises à partir de l'Afrique du Nord toute l'année : l'interaction entre les particules d'origine désertique et celles issues des feux de biomasse est donc maximale entre les mois de décembre et de février (Fig. 6.3).

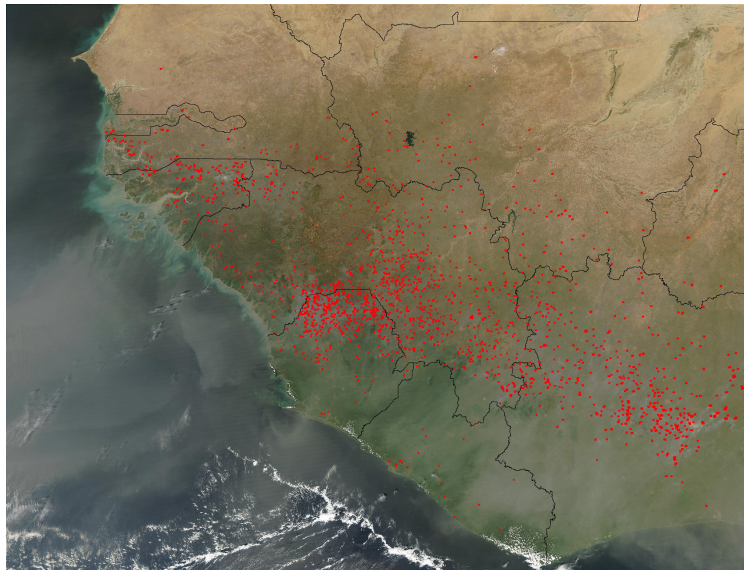


Fig. 6.3 : Image réalisée par l'instrument MODIS sur AQUA le 28 janvier 2003 mettant en évidence la détection simultanée de feux et d'épisodes de poussières désertiques sur l'Afrique de l'Ouest pendant la saison sèche.

Les aérosols provenant de la combustion de biomasse ont une influence significative sur le budget radiatif du système Terre-Atmosphère en diffusant et en absorbant le rayonnement

solaire (Haywood and Boucher, 2001 ; Haywood et al., 2003c ; Myhre et al., 2003a). Les émissions anthropiques en constituent la source majeure. De même, les poussières minérales ont une influence importante sur le budget radiatif solaire et tellurique (Tanre et al., 2003 ; Haywood et al., 2003b ; Highwood et al., 2003b ; Myhre et al., 2003b) ; les émissions naturelles en sont la principale source. Qu'elles soient produites par l'érosion éolienne ou les feux de biomasse, ces particules ont donc un impact important sur le forçage radiatif, du domaine UV à l'IR, et sur la microphysique des nuages. Elles constituent ainsi une composante importante du système de mousson africain qui doit être étudiée en vue d'une meilleure compréhension de l'évaluation du climat.

### 6.2.3 Les périodes d'observations spéciales (SOP) durant AMMA

Dans le but de conduire les études d'impacts et les applications socio-économiques initiées dans le cadre d'AMMA, il est nécessaire de documenter de manière géophysique la MAO à différentes échelles spatio-temporelles. Cela conduit à définir une stratégie de campagne reposant sur l'imbrication des domaines et des périodes d'observations, et sur l'utilisation des différentes plateformes instrumentées complémentaires (bateaux, sites au sol, ballons, moyens aéroportés, capteurs spatiaux). Le cœur du dispositif expérimental AMMA est constitué par les SOP de 2006. Elles ont pour objectif principal l'acquisition de jeux de données permettant d'étudier de façon détaillée une saison de mousson en termes de processus, et plus particulièrement les systèmes météorologiques lors des différentes phases de la mousson :

- La saison sèche précédant la mousson (janvier-février),
- L'établissement de la mousson (juin),
- La mousson au stade mature (juillet-août),
- La fin de la mousson (septembre).

Au sein de ces différentes phases, des moyens aéroportés et au sol sont déployés de façon coordonnée et selon une stratégie d'intégration des échelles et des disciplines incluant les données spatiales et la modélisation numérique.

### 6.2.4 La SOP-0

Des campagnes de mesure internationales ont permis par le passé d'étudier les propriétés physiques et radiatives des aérosols issus de la combustion de biomasse ou d'origine minérale. La composante issue de la combustion de biomasse sur le continent africain a ainsi été étudiée en détail lors de la campagne SAFARI (Southern AFricAn Regional science Initiative) en 2000 (Haywood et al., 2003c). De manière similaire, la composante minérale émise en Afrique a été étudiée en détail pendant la campagne SHADE (SaHAran Dust Experiment) en 2000 (Haywood et al., 2003b) au large de la côte Ouest du Sahara. Ces campagnes ont été consacrées à l'étude de l'aérosol provenant des feux de biomasse ou d'origine minérale, séparément et dans des régions différentes du continent africain.

Bien que les régions sources de particules de feux de biomasse et de poussières désertiques puissent être identifiées par des mesures radiométriques satellitaires, une des difficultés majeures consiste à déterminer précisément les processus de transport, de modification et d'interaction agissant sur ces particules en Afrique de l'Ouest. La description de ces processus est nécessaire pour une meilleure évaluation de l'impact radiatif de l'aérosol à l'échelle régionale. Jusqu'à présent, aucune campagne internationale n'a été spécifiquement dédiée à

l'étude des rôles des poussières minérales et des aérosols de combustion de biomasse en Afrique de l'Ouest, et leur influence sur le bilan radiatif du système Terre-Atmosphère. Un des objectifs de la SOP-0 est d'étudier les poussières désertiques et les particules de feux de biomasse au sein d'une région et à une saison où ils peuvent coexister et interagir au niveau microphysique. La saison sèche précédant la mousson présente les meilleures opportunités pour étudier des mélanges de poussières sahariennes et des aérosols provenant des feux de biomasse. La SOP-0 réalisée en janvier et février 2006 a un intérêt tout particulier pour les mesures d'aérosols et de rayonnement. Elle a impliqué plusieurs sites instrumentés au sol en Afrique de l'Ouest (M'Bour ( $14^{\circ}25' \text{ N}$ ,  $16^{\circ}58' \text{ O}$ ) au Sénégal, Banizoumbou ( $13^{\circ}31' \text{ N}$ ,  $2^{\circ}34' \text{ E}$ ) et Niamey ( $13^{\circ}30' \text{ N}$ ,  $2^{\circ}10' \text{ E}$ ) au Niger, Djougou ( $9.70^{\circ} \text{ N}$ ,  $1.68^{\circ} \text{ O}$ ) au Bénin). Ils ont été complétés par des mesures aéroportées réalisées à bord de l'avion BAe-146 FAMM (Facility for Airborne Atmospheric Measurements), d'un ULM (Fig. 6.4) et d'efforts de modélisation dédiés à cette étude.

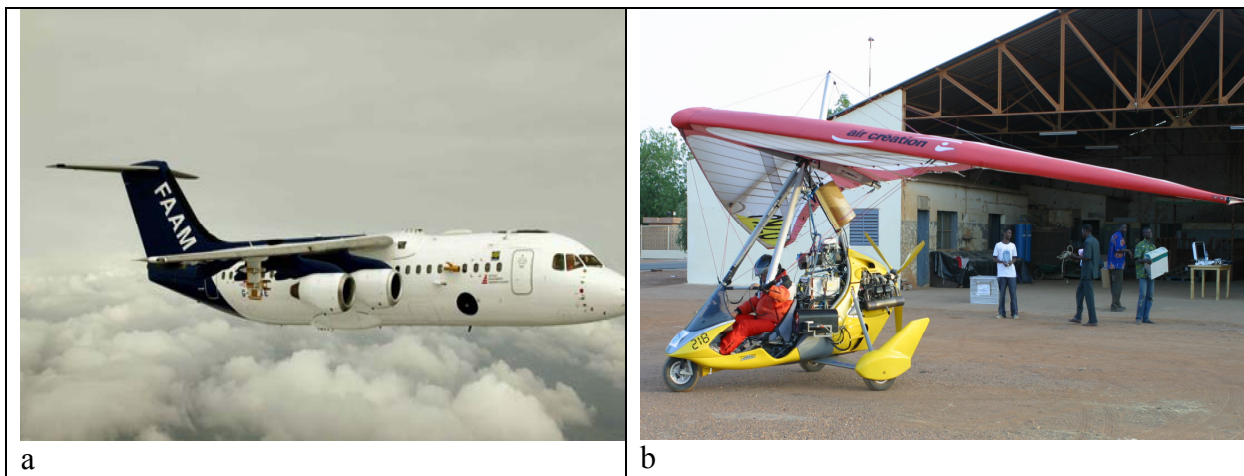


Fig. 6.4 : Moyens aéroportés déployés au-dessus de la région de Niamey en janvier et février 2006 lors de la SOP-0 d'AMMA : (a) : Avion de recherche du MetOffice anglais FAMM, (b) : ULM Tanarg français.

Les observations effectuées ont permis de constituer un jeu complet de mesures physico-chimiques et optiques, incluant un ensemble d'analyses chimiques et minéralogiques, les distributions en taille, les coefficients de diffusion et d'absorption en fonction de la longueur d'onde, les profils verticaux d'aérosols, le contenu en particules et leurs propriétés intégrés sur la colonne, ainsi que les flux radiatifs spectraux et à bande spectrale large. L'ensemble de ces mesures est utilisé afin d'estimer le forçage radiatif lié à l'effet direct des aérosols, de l'échelle locale à l'échelle régionale. Ce travail permet de mieux représenter la distribution des aérosols et leur impact radiatif dans les modèles atmosphériques, de différentes échelles. Ces données doivent également permettre d'améliorer ou de valider les produits aérosols déduits des observations spatiales.

L'objectif de la SOP-0 est donc de documenter précisément les propriétés optiques et physico-chimiques de ces deux types d'aérosols, notamment pour des situations de présence simultanée de ces particules de nature différente. Il s'agit :

- a) D'effectuer des observations in situ et de télédétection de qualité sur les propriétés optiques et microphysiques des aérosols issus de feux de biomasse et des aérosols d'origine naturelle soulevés suite à l'érosion éolienne des régions arides et semi-arides ;



- b) De déterminer l'interaction et le mélange éventuel entre ces deux types de particules en utilisant un couplage entre les mesures chimiques, structurales et optiques ;
- c) De fournir des données spectrales des effets radiatifs de ces aérosols ;
- d) De déterminer l'accord entre mesures in situ, mesures satellitaires et mesures de télédétection depuis la surface pour l'évaluation du forçage radiatif additionnel associé aux deux types d'aérosols.

### 6.3 Situations rencontrées

Les poussières désertiques sont transportées depuis des sources situées dans le désert du Sahara au Nord et à l'Est vers le Sahel par un flux d'Est ou Nord-Est à des altitudes faibles (inférieures à 2 km). Cet air froid et stable force l'air plus chaud chargé en provenance du Sud ou Sud-Est à s'élever au-dessus de la couche d'air chargée en poussières minérales (Fig. 6.5). Les masses d'air en provenance du Sud apparaissent comme plus humides mais également chargées en aérosols issus de feux de biomasse.

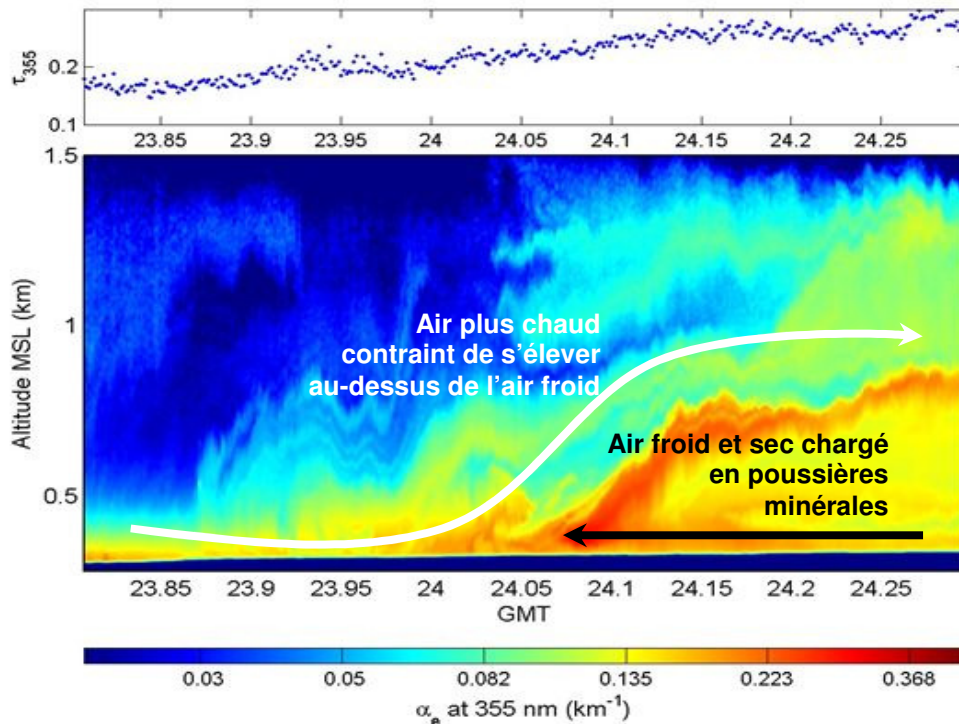


Fig. 6.5 : Profil de coefficient d'extinction à 355 nm mesuré par le LAUVA mettant en évidence la progression d'un front de poussières désertiques traversant Niamey dans la nuit du 23 au 24 janvier 2006. Le lidar est situé à l'aéroport de Niamey. L'axe des abscisses est exprimé en heures UTC décimales. Dans le cadran supérieur est figurée l'évolution temporelle de l'épaisseur optique totale en particules à 355 nm.

La masse d'air chargée en aérosols de feux de biomasse est advectée lentement vers le Nord et l'Ouest par un flux à des altitudes moyennes comprises entre 2 et 5 km. Cette couche peut être aisément détectée à plusieurs centaines de kilomètres au Nord des zones de feux actifs, en particulier à Niamey, ainsi qu'au Sud des zones de feux au-dessus du Golfe de Guinée. L'instabilité atmosphérique dans cette région s'avère être le facteur majeur dans le

soulèvement des couches d'aérosols issus de feux de biomasse au-dessus des couches de poussières désertiques. A l'inverse, la flottabilité dans les panaches de feux eux-mêmes (pyroconvection) a probablement peu d'effet.

Dans tous les cas traités, on observe une couche de poussières désertiques localisée dans les deux premiers kilomètres au-dessus de laquelle on peut rencontrer plusieurs couches superposées chargées en aérosols de feux de biomasse jusqu'à 6 km d'altitude (Fig. 6.6).

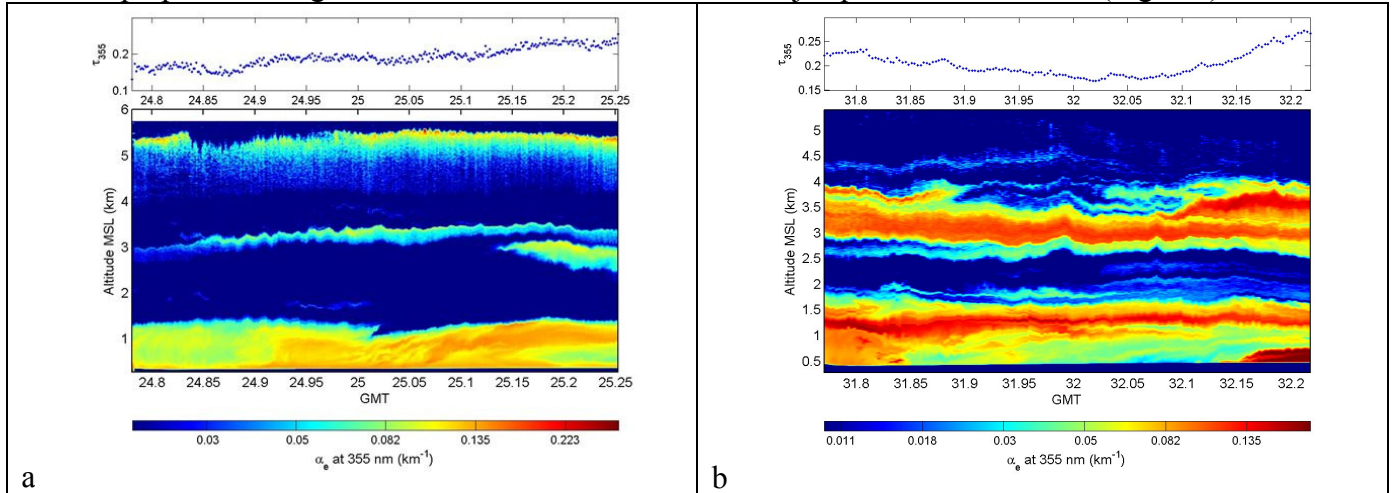


Fig. 6.6 : Profils de coefficient d'extinction à 355 nm mesuré par le LAUVA au-dessus de Niamey dans la nuit du 24 au 25 janvier (a) et dans la nuit du 31 janvier au 1<sup>er</sup> février (b). Le lidar est situé sur l'aéroport de Niamey. L'axe des abscisses est exprimé en heures UTC décimales. Dans le cadran supérieur de (a) et (b) est figurée l'évolution temporelle de l'épaisseur optique totale en particules à 355 nm.

### 6.4 Méthodologie envisagée

Comme précisé dans le paragraphe précédent, la SOP-0 d'AMMA, qui se déroule sur une zone et à une époque propices à l'étude des aérosols, s'est dotée de moyens expérimentaux performants afin de permettre la quantification du forçage radiatif direct des structures multicouches d'aérosols désertiques et issus des feux de biomasse. Les interactions du rayonnement avec ces particules sont complexes car elles dépendent principalement des propriétés de diffusion et d'absorption de ces couches, de leurs distributions en taille et de leurs positions respectives dans la colonne d'air. L'épaisseur optique totale peut atteindre des valeurs importantes à l'intérieur des panaches (0.6 à 355 nm). Ces fortes valeurs d'épaisseur optique, qui sont associées à des fortes concentrations d'aérosols, suggèrent que ces particules ont probablement des effets radiatifs significatifs sur la zone sahélienne. Cette section présente succinctement la méthode d'estimation du forçage radiatif des aérosols à partir des propriétés des aérosols restituées par une synergie instrumentale dans l'Article de Raut and Chazette (2008b). Le code de transfert radiatif TUV (Madronich and Flocke, 1998) qui fonctionne sur le principe des ordonnées discrètes pour les calculs de diffusion multiple et d'interactions avec l'absorption (Sect. 2.5.4.3) a été modifié de manière à pouvoir utiliser en arguments d'entrée l'ensemble des résultats de la méthode de couplage expérimental. Le code adapté fonctionne à une résolution verticale de 100 m, une résolution temporelle d'1 h et une résolution spectrale de 2.5 nm.

Les études des Chapitres 4 et 5 ont montré qu'il était important de considérer les conditions dans lesquelles se trouvaient les aérosols, s'ils étaient en mélange interne ou externe et si l'humidité relative était importante. Il est toutefois nécessaire, dans un premier temps, de caractériser davantage ces aérosols avant de pouvoir traiter leurs influences sur le rayonnement. L'évaluation du forçage radiatif direct en surface et au sommet de l'atmosphère induit par les aérosols requiert plusieurs paramètres, qu'il est nécessaire de déterminer le plus précisément possible. Dans ce Chapitre, on associe aux résultats précédents de nouvelles contraintes sur les propriétés optiques des aérosols de feux de biomasse et de poussières désertiques. Celles-ci permettent une estimation plus précise de l'indice de réfraction dans les différentes couches et de l'albédo de simple diffusion des aérosols requis pour le calcul de l'échauffement atmosphérique induit par les différentes masses d'air. La méthodologie pour évaluer ces paramètres et en déduire le forçage de l'aérosol est décrite sur la Fig. 6.7.

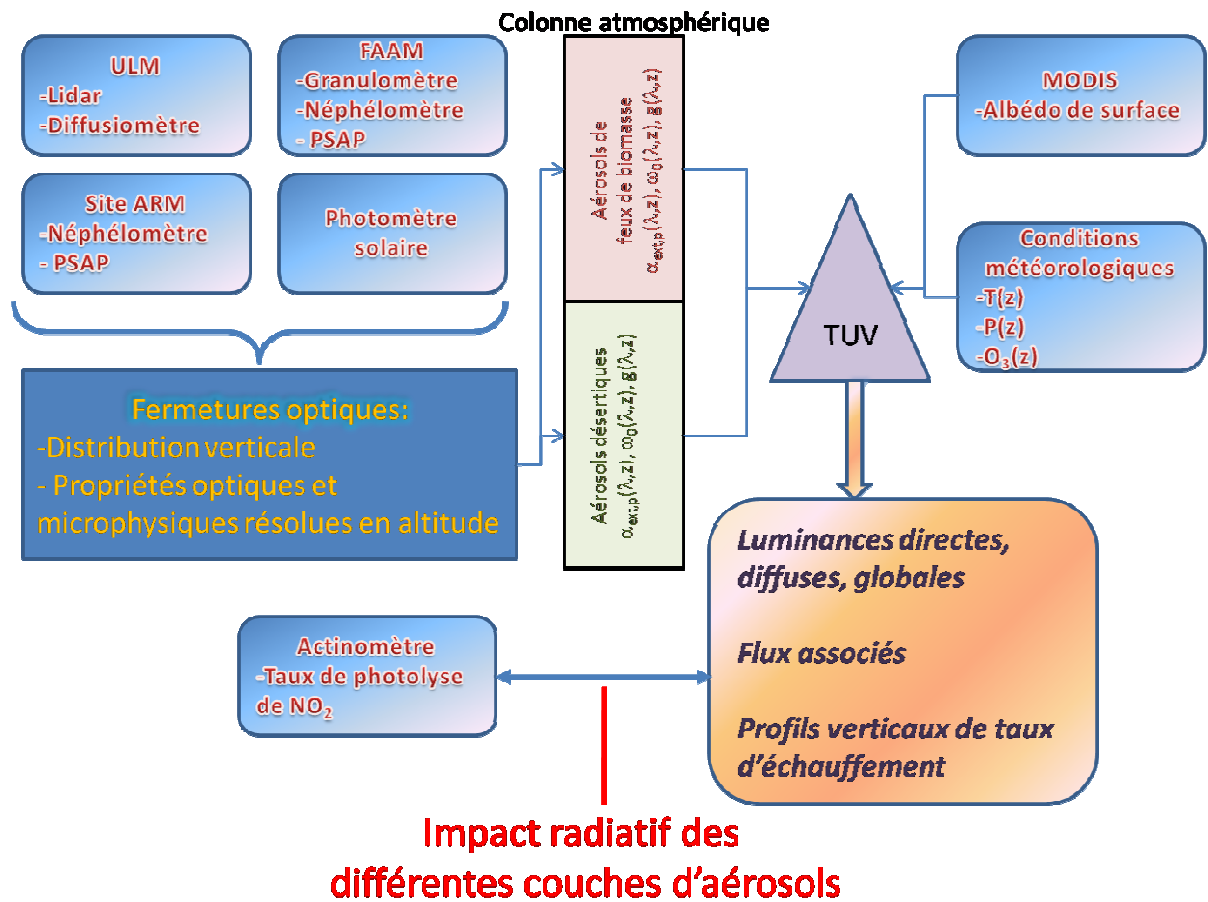


Fig. 6.7 : Schéma de la méthode d'estimation des forçages radiatifs directs des couches d'aérosols

Afin de déterminer les différentes propriétés des couches d'aérosols, la méthodologie utilisant une synergie entre l'optique et la distribution en taille des aérosols a été appliquée, en combinant mesures in situ en surface, mesures in situ aéroportées, observations aéroportées de télédétection active, et mesures radiométriques. Cette approche fournit pour chaque couche un indice de réfraction constant dans le domaine UV-Visible (Volz, 1973). À partir d'un modèle de Mie, sont calculées les propriétés optiques spectrales des aérosols nécessaires au code TUV modifié. Il s'agit de l'albédo de diffusion simple  $\omega_0(z, \lambda)$  principalement pour l'absorption du rayonnement par les particules et du facteur d'asymétrie  $g(z, \lambda)$  essentiellement pour la diffusion due aux aérosols. Le coefficient d'Angström permet d'étendre spectralement

les coefficients d'extinction des particules à tout le domaine spectral considéré dans l'étude. En plus de ces propriétés optiques, il faut aussi connaître la valeur de l'albédo de surface, notamment pour l'estimation du forçage radiatif direct exercé au TOA. Le code TUV prend enfin en compte la faible absorption par les gaz dans le domaine UV-visible ( $O_2$ ,  $O_3$ ,  $NO_2$ ,  $SO_2$ ...) et la diffusion par les molécules de type Rayleigh. Cette dernière nécessite des informations météorologiques. L'entrée du code TUV utilise par conséquent :

- les profils verticaux de vapeur d'eau, d'ozone, de pression, de température issus des mesures faites à bord de l'avion de recherche FAAM du MetOffice ou de l'ULM, complétés par l'extrapolation des données climatologiques pour les hautes couches atmosphériques (au-dessus de 5 km) ;
- les propriétés optiques  $\alpha_{ext,p}$ ,  $g$ ,  $\omega_0$  des aérosols estimées en faisant tourner un code de Mie à partir des indices de réfraction et des distributions en taille pour tout le spectre solaire et dont la répartition verticale est définie, en partie, grâce aux mesures des profils verticaux du lidar ;
- l'albédo de surface terrestre estimé à partir du capteur MODIS sur tout le spectre solaire pour tous les angles zénithaux solaires possibles.

En sortie, le code TUV calcule les luminances, les flux et les taux d'échauffement radiatif à tous les niveaux de l'atmosphère définis par la grille du code de transfert radiatif (résolution de 100 m en dessous de 5 km d'altitude). Les conventions utilisées pour l'étude du forçage radiatif à la surface, au TOA et dans toute la couche atmosphérique sont les mêmes que celles généralement utilisées dans la littérature et décrites à la Sect. 2.5.5. Les valeurs du taux de photolyse du dioxyde d'azote calculées par le modèle de transfert radiatif TUV sont ensuite comparées à celles mesurées par un actinomètre localisé au niveau du sol. Le code de transfert radiatif étant lui-même contraint par des observations, cela permet d'en déduire le jeu de données conduisant à la synergie expérimentale la plus précise.

L'Article de Raut and Chazette (2008b) présente en détail l'approche décrite ci-dessus. La première partie a été consacrée à la méthodologie qui a permis, par divers jeux de données, l'estimation de l'ACRI dans chacune de couches de poussières minérales ou d'aérosols de feux de biomasse. Elle comprend la description du modèle de transfert radiatif TUV ainsi que la description des différents paramètres de l'aérosol nécessaires à l'entrée du modèle. Les résultats du modèle sont ensuite décrits et différentes études de sensibilité sont menées. L'influence des indices et du profil vertical des propriétés optiques de l'aérosol est enfin étudiée.



## 6.5 Impact radiatif des structures multicouches de particules (Article de Raut and Chazette, 2008b)

### Radiative budget in the presence of multi-layered aerosol structures in the framework of AMMA SOP-0

J.-C. Raut<sup>1</sup> and P. Chazette<sup>1</sup>

[1]{Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement, Laboratoire mixte CEA-CNRS-UVSQ, CEA Saclay, F-91191 Gif-sur-Yvette, France}

#### Abstract

This paper presents radiative transfer calculations performed over Niamey in the UV-Visible range over the period 26th January – 1st February 2006 during the African Multidisciplinary Monsoon Analysis (AMMA) international program. Climatic effects of aerosols along the vertical column have required an accurate determination of their optical properties, which are presented in for a variety of instrumented platforms: Ultralight aircraft, Facility for Airborne Atmospheric Measurements (FAAM) research aircraft, AERONET station. Measurements highlighted the presence of a multi-layered structure of mineral dust located below and biomass-burning particles in the more elevated layers. Radiative forcing was affected by both the scattering and absorption effects governed by the aerosol complex refractive index (ACRI). The best agreement between our results and AERONET optical thicknesses, ground-based extinction measurements and NO<sub>2</sub> photolysis rate coefficient was found using the synergy between all the instrumented platforms. The corresponding averaged ACRI at 355 nm were  $1.53 (\pm 0.04) - 0.047i (\pm 0.006)$  and  $1.52 (\pm 0.04) - 0.008i (\pm 0.001)$  for biomass-burning and mineral dust aerosols, respectively. Biomass-burning aerosols were characterized by single-scattering albedo ranging from 0.78 to 0.82 and asymmetry parameter ranging from 0.71 to 0.73. For dust aerosols, single-scattering albedo (asymmetry parameter) ranged from 0.9 to 0.92 (0.73 to 0.75). The solar energy depletion at the surface is shown to be  $\sim -21.2 (\pm 1.7) \text{ W/m}^2$  as a daily average. At the TOA, the radiative forcing appeared slightly negative but very close to zero ( $\sim -1.4 \text{ W/m}^2$ ). The corresponding atmospheric radiative forcing was found to be  $\sim -19.8 (\pm 2.3) \text{ W/m}^2$ . Mineral dust located below a more absorbing layer act as an increase in surface reflectivity of

$\sim 3\text{--}4\%$ . The radiative forcing is also shown to be highly sensitive to the optical features of the different aerosol layers (ACRI, optical thickness and aerosol vertical distribution).

#### 1. Introduction

In contrast to the radiative forcing attributed to greenhouse gases, which may be estimated to a reasonably high degree of accuracy, the uncertainties related to aerosol radiative forcings remain very large. Hence, aerosol particles have received an increasing amount of attention in the recent years. Scattering and absorption by aerosols have a significant impact on the energy budget of the atmosphere (Alpert et al., 1998), as well as on the surface (Fouquart et al., 1987). They reduce the solar radiative flux at the surface (Charlson et al., 1992), can limit surface evaporation and surface heat fluxes, and may modify large-scale atmospheric circulations as shown during the Indian Ocean experiment (INDOEX, Ramanathan et al., 2001; Léon et al., 2005). They also influence the climate altering the radiative properties and lifetime of clouds when particles act as Cloud Condensation Nuclei (Twomey et al., 1984). Atmospheric dynamics and convection can therefore be affected by aerosol (Ackerman et al., 2000). Assessing their influence is made complex by the high spatial and temporal variability of aerosol physical, chemical, and optical properties. This problem arises mainly due to diverse range of aerosol sources and their short residence times in the atmosphere.

Among all sources of atmospheric particles, Western Africa is the world's largest source of biomass burning aerosols (Andreae and Merlet, 2001) and mineral dust (Prospero et al, 2002). The regional impacts of mineral dust events have been studied, especially over sea areas, in previous multi-disciplinary campaigns involving ground-based monitoring, research aircraft,

satellite observations, e.g. Mediterranean Dust experiment (MEDUSE, Hamonou et al., 1999; Dulac and Chazette, 2003), Saharan Dust Experiment (SHADE, Haywood et al., 2003b) and the Aerosol Characterisation Experiment (ACE-Asia, Seinfeld et al., 2004). However, there are limited studies of mineral dust in mixtures with biomass burning aerosol. The Sahelian region is a major global source of biomass-burning aerosol during the dry season (Bond et al., 2004) with maximum emissions occurring from December to March (Swap et al., 2003). Their black carbon content depending on fire intensity and vegetation density clearly affects the radiation balance. Such submicronic aerosol particles have a strong effect on solar radiation but have negligible effect on terrestrial radiation because aerosol optical depth decreases strongly with increasing wavelength leading to the tendency for sub-micron aerosol layers to be transparent at infrared wavelengths (Harshvardhan, 1993).

Previous observations of biomass-burning aerosols have been performed mainly in South America (e.g. Reid et al. 1998; Kaufman et al., 1998; Andrea et al., 2004), in Southern Africa (i.e. Swap et al., 2002; Myhre et al., 2003) and in Western India (e.g. Ramanathan et al., 2001; Pelon et al., 2002). Nevertheless, few observations are available about the radiative impact of burning of agricultural waste in the Sahelian region that likely influence the African monsoon cycle, living conditions and human health in that region.

Moreover, in the Sahel dust and biomass burning aerosols co-exist and may interact on a microphysical level, a process that has not been investigated yet in past field experiments. The objective of the Dust and Biomass Burning Experiment (DABEX), as part of African Monsoon Multidisciplinary Analysis (AMMA) (Redelsperger et al., 2006), was to characterize the optical properties and direct radiative forcing of dust and biomass-burning aerosols in the Sahel. DABEX was conducted during the AMMA dry season Special Observation Period SOP-0 in January-February 2006 over Western Africa. Haywood et al (2008) provides an overview of the experimental objectives, platforms, and meteorology during DABEX and AMMA SOP-0. This study complements the works of Johnson et al. (2008a), Osborne et al. (2008) and Mallet et al. (2008) which report the optical characterization of biomass-burning aerosols, mineral dust particles and radiative effects of biomass-burning particles in Northern Benin, respectively.

This paper presents radiative transfer calculations performed over Niamey in the UV-Visible range over the period 26th January – 1st February. Accurate calculations of the radiative effects of dust and biomass-burning aerosols through the atmospheric column require high quality measurements of their microphysical and optical properties. These properties are derived in this study from a variety of instrumented platforms, including ground-based, airborne and integrated-column remote

sensing. The sensitivity of the radiative effects to optical features of the different layers will be also presented.

## 2. Tools

### 2.1 Instrumental set-up

Ground-based observations at Niamey (13°30' N, 2°10' E, Niger) have been complemented by ultra-light aircraft (ULA) and Facility for Airborne Atmospheric Measurements (FAAM) aircraft measurements, which provide a characterization of dust and biomass burning aerosols microphysical and optical properties within the low and middle troposphere (between the ground to 5 km above the mean sea level (amsl)).

#### 2.1.1 ULA platform

The ULA used was built by the Air Création Company ([www.aircreation.fr](http://www.aircreation.fr)). It is a high performance model Tanarg 912-XS weight-shift control ULA platform. Technical features are fully described in Chazette et al. (2007). The advantages of such an aircraft are its manoeuvrability in small atmospheric volumes, its ability to cruise at levels from near-surface up to more than 5.5 km, and its low speed of flight, which minimizes the isokinetic problems involved in in situ aerosol measurements. Furthermore, it can use small airfields for takeoff and landing. The ULA performed 17 flights within the vicinity of Niamey: ULA-1 to 17. The aerosol payload was composed of an eye-safe backscatter lidar emitting in the ultraviolet and a scatterometer to measure the aerosol side-scattering in the near-infrared described in the following.

**The Lidar Aérosol UltraViolet Aéroporté (LAUVA)** is a homemade prototype instrument developed by the Commissariat à l'Energie Atomique (CEA) and the Centre National de la Recherche Scientifique (CNRS). It was designed to monitor the aerosol dispersion in the low and middle troposphere. It operates with a Nd:Yag laser at the wavelength of 355 nm. It is light, compact, eye-safe and suitable for an airborne platform. Its resolution along the line of sight is 1.5 m. During flights, the combination of horizontal shooting during ascent and descent phases with nadir shooting during transects enabled us to derive vertical profiles of backscatter-to-extinction ratio (BER) and backscattering coefficient. Further description of this data retrieval procedure can be found in Chazette et al. (2007).

**The Personal DataRam (PdRam)** is a small portable nephelometer-type instrument documented in Dulac et al. (2001), who operated it under a sounding balloon off the coast of the Sahara. It measures aerosol side-scattering in the angular range of 45–95° at the wavelength of 880 nm (bandwidth of 40 nm). The instrument is calibrated in terms of Mie scattering using a gaseous reference scatterer and in terms of aerosol extinction at 870 nm against a ground-based sunphotometer (Chazette et al., 2007).

A **Vaisala meteorological probe type PTU200** was used to measure the temperature, the relative humidity, and the atmospheric pressure.

In addition, a **global positioning system** manufactured by Trimble was used to measure the location of the ULA (with accuracies of 15 and 10 m for vertical and horizontal positions, respectively), and an **artificial horizon** (electronic flight information system) manufactured by Dynon Avionics was used to locate the lidar line of sight in the three dimensions of space, with an accuracy close to 0.5°.

### 2.1.2 FAAM platform

The Facility for Airborne Atmospheric Measurements (FAAM) BAe-146 meteorological research aircraft is used by the UK atmospheric research community. It was based at Niamey, Niger from 11<sup>th</sup> January to 3<sup>rd</sup> February. All flights started and ended at Niamey International Airport. The aircraft performed 13 flights within the vicinity of Niamey. It contains a comprehensive suite of instruments measuring aerosol, cloud, chemical tracers, solar and terrestrial radiative fluxes and standard meteorological variables that are described in Johnson et al. (2008a) and summarized below.

Aerosol size distributions were measured by the **Passive Cavity Aerosol Spectrometer Probe 100X (PCASP)**, mounted externally under the aircraft wing and sizing aerosols with radii in the range 0.05 - 1.5  $\mu\text{m}$ . The PCASP is calibrated using latex spheres of known sizes. The refractive index of latex (1.58) differs slightly from those of biomass-burning or mineral dust aerosols. This causes the PCASP to underestimate aerosol radius by a factor of 0.93 over the optically active part of the size-spectrum (0.1 - 0.3  $\mu\text{m}$ ) (Haywood et al. 2003a). For larger (super-micronic) particles, aircraft sampling is always problematic.

A **three-wavelength (450, 550 and 700 nm) nephelometer** (manufactured by TSI®) was used onboard the aircraft. This instrument uses a Rosemount head for its inlet and measures the aerosol scattering coefficient in a 7-170° range of scattering angle (Bodhaine et al., 1991). To compensate for the limited range of scattering angles, the nephelometer data was calibrated using Anderson and Ogren (1998) sub-micron corrections. Also, because sampling efficiency drops off rapidly with particle size above about 1  $\mu\text{m}$  radius (Haywood et al., 2003a) a correction was made to account for large particle losses (Osborne et al. 2008). To allow comparison with the lidar that operates at 355 nm, the scattering coefficient of the nephelometer has been extrapolated in wavelength using the Angström exponent derived from the 450 nm and 550 nm channels. The nephelometer heats air in the instrument, which may lead to partial or complete evaporation of any water present around the aerosols. However, since the ambient relative humidity was very low (mean of 40%

and standard deviation of 30%) during most flights it is unlikely that the aerosols contained much water.

A **Particle Soot Absorption Photometer (PSAP)**, also equipped with a Rosemount inlet, measures the aerosol absorption coefficient at 567 nm, inferred from loss of transmission of light through a filter. The PSAP absorption coefficient was corrected for errors in filter exposure area, air flow rate, over-reading of absorption, the influence of scattering by aerosols collected on the filter, and multiple scattering within the filter following the methods of Bond et al. (1999). An adjustment was also made to convert the absorption coefficient measured at 567 nm to 355 nm, the wavelength of the LAUVA. For this correction the absorption is assumed to vary as the reciprocal of wavelength, as in Reid and Hobbs (1998).

Aircraft altitudes were measured by a **global positioning system**.

### 2.1.3 Ground measurements

Aerosol RObotic NETwork (AERONET) aerosol optical depths (AOD, level 2.0) and aerosol size distributions of the Banizoumbou (13°31' N, 2°34' E) ground site located at about 50 km East from Niamey are used in this paper (Rajot et al., 2008). The retrievals were carried out using Version 2 of the inversion algorithm (Dubovik et al., 2006). The channels of the **sunphotometer** used for this study are centered at 438 nm and 669 nm, with bandwidths of less than 20 nm and the instrument field of view is about 1° (Holben et al., 1998). The AERONET database gives a maximal absolute uncertainty of 0.02 for the optical thickness due to calibration uncertainty for the field instruments. Extrapolation is then used to estimate the AOD at 355 nm for comparison with the lidar. Values have been averaged at the closest time of the flights. In particular, no measurement was available on the 26th January before 13:30 UTC and thin cloud on 28<sup>th</sup> January prevented accurate retrievals by AERONET so no AOD data was available.

The actinic flux is the radiation quantity that best describes the geometry in photoreactions. It is sensitive to aerosol presence and is a function of the aerosol optical parameters. To monitor the actinic flux at the ground station, a **JNO<sub>2</sub> optical actinometer** (manufactured by Metcon, Glashütten, Germany) has been installed. It is dedicated to the measurement of the photodissociation rate coefficient  $J(\text{NO}_2)$  of NO<sub>2</sub> molecule, which is the probability for a NO<sub>2</sub> single molecule to be photodissociated by absorbing solar radiation.  $J(\text{NO}_2)$  is a function of the actinic flux, the photodissociation quantum yield and the absorption cross section of the NO<sub>2</sub> molecule. Actinic flux is measured by a radiometer made up of two identical detectors with uniform response over  $2\pi$  sr. Using the calibration coefficient determined from a comparison with a chemical actinometer, the measured actinic flux is directly converted into  $J(\text{NO}_2)$  values (in s<sup>-1</sup>) with a relative accuracy of about 1%. Both

detectors were set up at about 6 meters above the ground, one pointing up and the second one parallel but pointing down. Such a configuration allows the determination of the upward  $J(NO_2)^u$  and downward contribution  $J(NO_2)^d$  (Randriamiarisoa et al., 2004). This instrument was operated at Niamey airport.  $J(NO_2)$  data are recorded every minute.

**The Atmospheric Radiation Measurements** (ARM; see <http://www.arm.gov/sites/amf.stm>) Mobile Facility (AMF) was installed at Niamey airport for the duration of the DABEX field campaign. Thus, scattering and absorption coefficients were also measured at the surface from a nephelometer working at 450, 550 and 700 nm and a PSAP operating at 467, 530 and 660 nm (Miller et al., 2007).

### 2.1.4 Satellite observations

**The MODerate-resolution Imaging Spectroradiometer (MODIS)** satellite observations (<http://modis.gsfc.nasa.gov/>) provide the Bidirectional Reflectance Distribution Function (BRDF) of each pixel in MODIS spectral “Land” bands, as well as for three broad bands (0.3-0.7, 0.7-5.0, and 0.3-5.0  $\mu\text{m}$ ). They give data describing both directional hemispherical reflectance (black-sky albedo) and bihemispherical reflectance (white-sky albedo). These are intrinsic surface properties, independent of atmospheric state. They describe the upward scattering of the solar beam and of uniform diffuse irradiance, respectively. In this study, we used both Terra and Aqua data providing 16-day composites projected to a 0.05 degree (5600 m) latitude/longitude Climate Modeling Grid.

## 2.2 Radiative transfer model

### 2.2.1 TUV model

The estimation of the aerosol radiative forcing has been performed using the Tropospheric Ultraviolet and Visible (TUV) radiative transfer model. TUV was developed by Madronich and his colleagues at the U.S. National Center for Atmospheric Research (<http://cprm.acd.ucar.edu/Models/TUV/>, Madronich and Flocke, 1998) and uses the DIScrete ORDinates Radiative Transfer (DISORT) solver (Stamnes et al., 1988) modified for pseudo spherical geometry. Version 4.4, four-stream and sixteen-stream discrete ordinate calculations were used in this study to calculate the heating rate from 0 to 12 km and the aerosol radiative forcings at the surface and at the top of the atmosphere in the spectral interval 200 -750 nm.

The TUV model has been chosen because it allows an accurate computation of actinic fluxes leading to a possible comparison of actinometer measurement with the retrieved photodissociation rate coefficient  $J(NO_2)$  for each dataset. Models using the Atmospheric Laboratory for Applications and Science 3 (ATLAS-3) extraterrestrial solar spectrum, such as TUV model, are in better agreement with measurements, suggesting the

appropriateness of ATLAS-3 for model calculations (Bais et al., 2003). Investigating the spectrally resolved actinic fluxes calculated by 16 models, Bais et al. (2003) showed that when all model input parameters except the extraterrestrial solar spectrum are the same, the calculated actinic flux spectrum based on ATLAS-3 compares better with the measurements at the ground in the region 300-400 nm than those based on Modtran 3 and Neckel and Labs (1984).

Another reason for choosing the TUV model is that we try to properly evaluate the aerosol complex refractive index (ACRI) in this paper for dust and biomass-burning aerosols at 355 nm. An accurate assessment of the visible radiative impact of atmospheric aerosols can be carried out assuming that ACRI is constant between 0.3 and 0.8  $\mu\text{m}$  (Volz, 1973). In the near infrared spectrum, this hypothesis is not realistic any longer. Volz (1973) showed for instance that the real part of mineral dust particles sharply drops from 1.5 to 1.2 between 1 and 2  $\mu\text{m}$ . Important spectral dependence of imaginary parts in shortwave infrared region was also observed for hygroscopic aerosols, such as biomass-burning particles. Our study thus focuses on radiative transfer calculations in UV-Visible domain and a discussion on the representativity of the results will be performed.

### 2.2.2 Radiative approach

Radiative transfer computations depend on several input parameters: spectral surface albedo, vertical profiles of atmospheric pressure, temperature, ozone, spectral aerosol extinction coefficient, single-scattering albedo ( $\omega_0$ ) and asymmetry factor ( $g$ ). Those aerosol dependent parameters can be determined from the aerosol complex refractive index (ACRI), aerosol size distribution and lidar or nephelometer measurements of aerosol extinction.

The TUV model has been slightly modified to take into account the vertical distribution of all optical parameters: extinction coefficient, single-scattering albedo, and asymmetry factor. To accurately describe the impact of the multilayered structure in the atmosphere, the model vertical grid has been divided into homogeneous layers of 0.1 km thickness from 0 to 5 km altitude, 0.5 km thickness from 5 to 12 km, and 2 km thickness above 12 km. Pressure, temperature and relative humidity vertical profiles used in the TUV were taken from measurements made onboard the FAAM aircraft and ULA during each flight. Ozone concentration profiles were also taken from measurements by the FAAM. Above 5 km, the profiles of atmospheric constituents have been completed using the US Standard Atmosphere annual means of 1976 at 45°N, which do not much differ from the tropical mean profiles above 5km (McClatchey et al., 1972).

## 6. Application au transfert radiatif

Table 1: Dates and times of flight profiles from the FAAM and ULA aircraft for the five selected case studies, plus AODs calculated at 355 nm from the aircraft profile and the AERONET sunphotometer at Banizoumbou.

Case	Day	FAAM flight period (UTC)	FAAM AOD	ULA flight period (UTC)	ULA AOD	AERONET AOD
1	26 Jan.	08 :10 – 08 :34	0.82	07 :09 – 09 :03	0.54	0.65
2	26 Jan.	10 :24 – 10 :37	0.75	09 :59 – 10 :53	0.66	0.65
3	26 Jan.	11 :44 – 11 :58	0.73	11 :30 – 12 :04	0.56	0.65
4	28 Jan.	09 :54 – 10 :11	0.54	09 :12 – 11 :06	0.46	-
5	01 Feb.	11 :05 – 11 :21	0.60	07 :31 – 09 :11	0.43	0.46

Two radiative transfer methods proposed by the radiative transfer modelling have been used: the 4-stream discrete ordinates method to simulate the irradiances (Stamnes et al., 1988) and a more precise approach to calculate the photolysis rates, the 16-stream discrete ordinates method, based on preferred directions along which the resolution of transfer radiative equation is done, allowing an accurate treatment of multiple scattering effects by aerosols.

Calculations of both direct  $F_{dir}^d$  and diffuse downwelling  $F_{diff}^d$  fluxes, and diffuse upwelling fluxes  $F_{diff}^u$  in clear-sky conditions enabled the determination of the net radiative fluxes over the UV and visible spectrum for 24 hours periods with 1 hour time resolution. Aerosol radiative forcings at the bottom of atmosphere (BOA,  $\Delta F_{BOA}$ ), at the top of the atmosphere (TOA, 12 km,  $\Delta F_{TOA}$ ) and in the atmospheric layer containing the particles (ATM,  $\Delta F_{ATM}$ ) are then calculated. Heating rates due to the only presence of aerosols have then been calculated.

### 3. Coherence of the experimental datasets

Five case studies are considered in this study. They correspond to the five coordinated flights between ULA and FAAM aircraft. The three first cases correspond to B163-2 (ULA-6), B163-4 (ULA-7a), B163-9 (ULA-7b) flights of 26 January, and the last ones to B164-2 (ULA-9) and B166-1 (ULA-17) flights of 28 January and 1 February, respectively. The profiles were all acquired quite close to Niamey (less than 100 km distance) and the corresponding flight periods are summarized in Table 1.

#### 3.1 Vertical profiles of extinction coefficient, Angström exponent and water vapour

ULA, FAAM aircraft, ARM and AERONET datasets have been compared in the atmospheric column in terms of aerosol extinction coefficient, calculated as the sum of scattering and

absorption for FAAM and ARM results, and plotted on Fig. 1, Fig. 2, Fig. 3, Fig. 4 and Fig. 5 for each case.

All flights show similar vertical structures in the aerosol profile where aerosol extinction is highest in the lowest 1.5 km (cases 1 to 3) or 1 km (cases 4 and 5) of the atmosphere, illustrating the dominance of dust aerosols in the lowest layers. Above the dust, elevated layers of biomass-burning aerosols are present at altitudes up to 4 or 5 km. Above the biomass-burning layer aerosol extinction falls to negligible values. The mineral dust layers are distinguished from the biomass-burning aerosol layers by the very low (even negative) Angström exponent (between 355 and 880 nm) in the first 2 km. The dust layer is also accompanied by very high values of FAAM single-scattering albedo (0.96 to 0.98) (as consistent with Osborne et al., 2008) and a low values of water vapour mixing ratio (0.002 to 0.004). In contrast, several layers between 1 and 5 km show a higher Angström exponent (0.5 – 1.5), a lower single-scattering albedo (0.85 – 0.9 from FAAM) and a higher water vapour mixing ratio (0.004 – 0.007). These characteristics can be related to tropical air masses where biomass burning aerosols are present. The lower, stable and thermodynamically well-mixed layer seems to prevent dust and biomass burning aerosols from mixing together. However, mixing of dust and biomass burning aerosol did occur further south from where the fires occurred, which led to an appreciable amount of dust becoming lofted up into the “biomass-burning” aerosol layer (Johnson et al. 2008a). An analysis of back-trajectories (not shown in this study) has indicated that the high concentrations of mineral dust aerosols were predominantly due to emissions from the Sahara desert and arid parts of the Sahel on the North or East of Niamey (Chazette et al., 2007). Because of the vicinity of Niamey city, it is also likely that biomass-burning aerosols from local fires and urban and industrial aerosols mixed with the dust in the boundary layer. Biomass-burning particles stem from elevated layers that have been transported thousands of kilometers across the continent. They originate from intense agricultural burning of crop debris or grass during the dry season (e.g. Haywood et al., 2008).

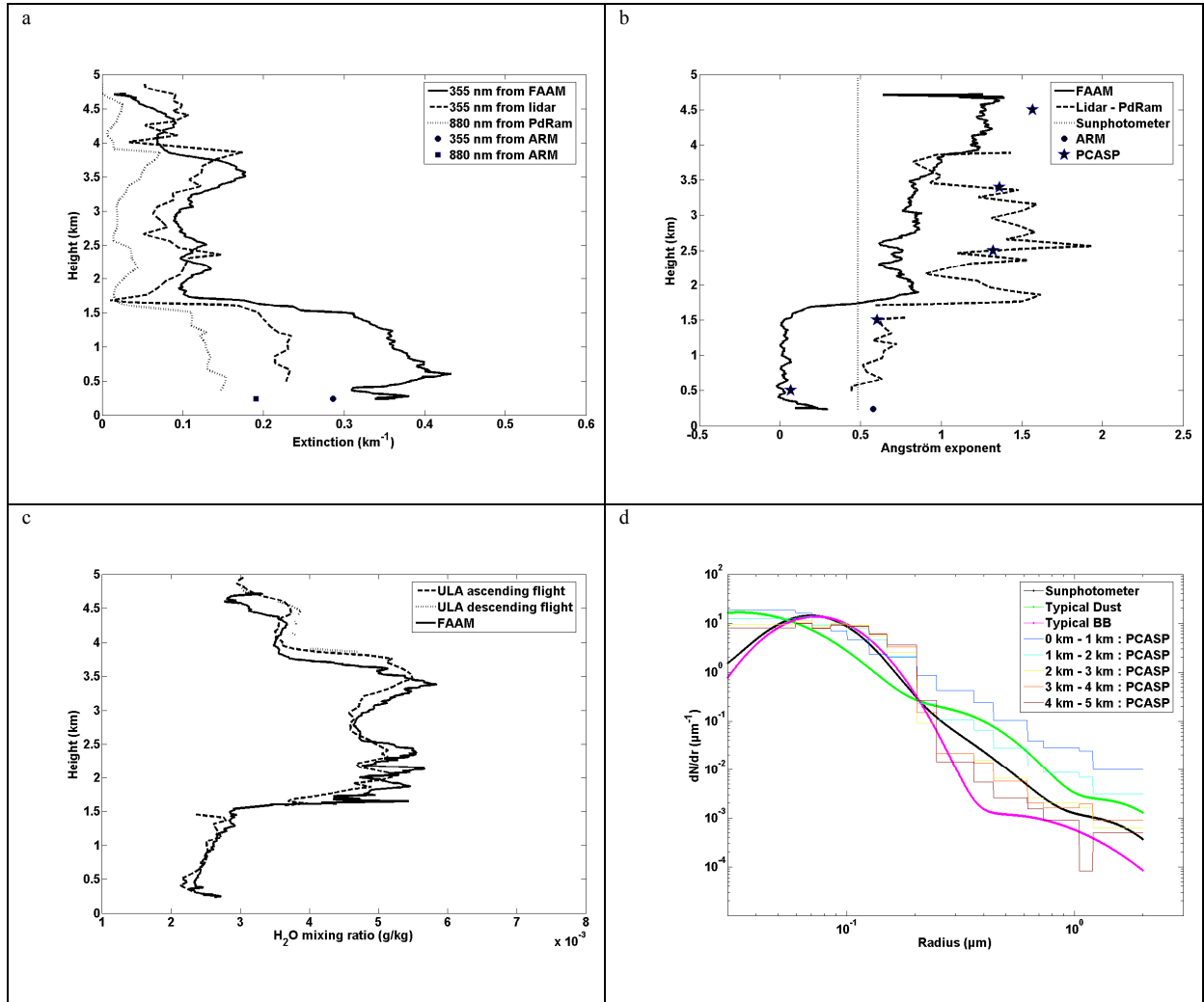


Fig. 1: Vertical profiles of aerosol extinction coefficient at 355 and 880nm (a), Angström exponent from FAAM between 450 and 550 nm (nephelometer and PSAP), ULA between 355 and 880 nm (LAUVA and PdRam), AERONET between 440 and 870 nm platforms and PCASP size distribution with mean complex refractive indices (retrieved in this study) between 355 and 800 nm (b), water vapour mixing ratio from ULA and FAAM (c) observed in the case 1. Values derived from ARM data at the surface are reported by dots. Aerosol size distributions measured from the PCASP, from the sunphotometer (smooth black curve), for typical dust (smooth green curve) and for typical biomass-burning particles (smooth pink curve) for case 1 are also reported (d).

The ULA and FAAM profiles (Figs. 1 -5) reproduce the main features of the aerosol profile, such as distinctive layers, quite consistently in the five selected case studies. However, several discrepancies can be observed in the extinction coefficient profiles. A good agreement is found in the biomass-burning aerosol layer, but not in the dust aerosols layer where the FAAM measurements are significantly higher. This overestimation in dust layers was also noted in Johnson et al. (2008b) and is attributed to over correction for anticipated loss of large particles in the nephelometer and PSAP. A comparison with ARM extinction coefficients measured on the ground level shows that the ULA results are closer to surface measurements (within 15%), a further indications that the aerosol extinction coefficient derived from airborne nephelometer and PSAP data was largely overestimated. This result is in accordance with independent

AOD measurements at 355 nm from Banizoumbou AERONET station (Table 1). The overestimation of FAAM measurements in the dust layer can lead to an optical thickness 33% higher than AERONET AOD (case 5) (Table 1). On the contrary, an underestimation of AOD by 18% is observed for ULA data in cases 1 and 3, whereas a very good agreement was found in cases 2 and 5 (within 7%). Extinction coefficient retrieved from lidar has an absolute uncertainty of 0.02, which can explain the differences with AERONET AODs when integrated over the column. These differences may be partly explained by uncertainties associated with aerosol optical properties in both lidar and aircraft in situ measurements, or might be attributed to inhomogeneity of aerosol fields during the sampling.

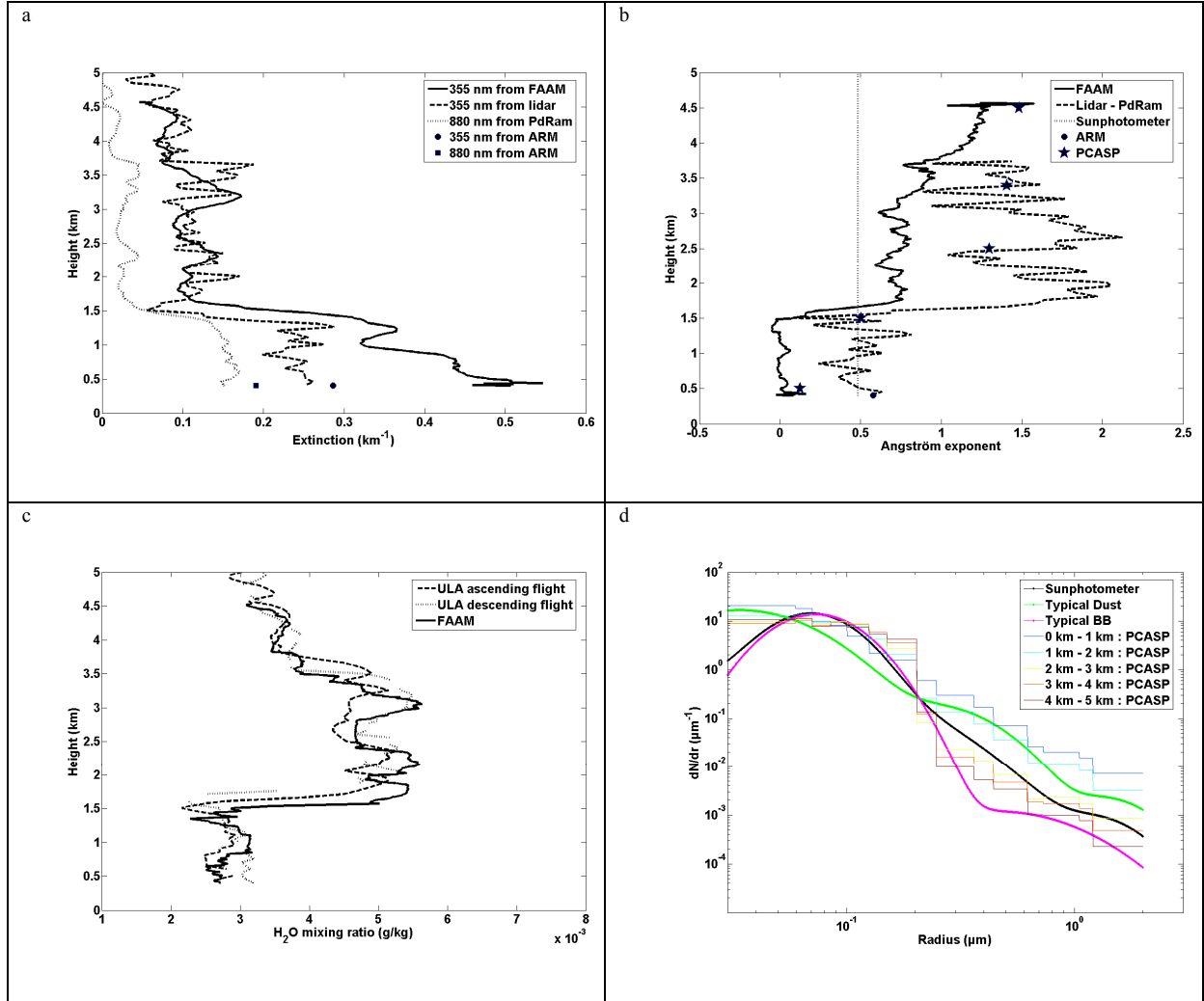


Fig. 2: Same as Fig. 1 for case 2.

Nevertheless, we should bear in mind that the magnitude of the various biomass-burning aerosol layers are relatively stable and that the differences essentially occur in the sampling of large and aspherical dust particles. Uncertainty in the sampling efficiency of particles larger than about  $1.5 \mu\text{m}$  in Rosemont inlets and errors caused in correcting irregular scattering phase functions by standard Andersen and Ogren method (Andersen and Ogren, 1998) can explain such uncertainties. This correction is based on the aerosol size distribution derived from the PCASP, which is limited in the detection of large particles whose contribution, especially over the desert, is clearly significant.

Adding to this uncertainty, there is quite a large disagreement between Angström exponents derived from the FAAM and from ULA, even if the distinction between aerosol layers is clear in both measurements. Generally the graphs of Angström exponent in Figs 1 to 5 indicate that the sunphotometer-retrieved Angström exponent corresponds both to the column-integrated Angström coefficient as measured by the FAAM and to the value the ULA-derived Angström exponent attains in the mineral

dust layer with a larger optical thickness. Nevertheless, this is no longer valid for case 5, where both ULA-derived and FAAM derived Angström exponents are in agreement but differ from the sunphotometer's one. We have to note that the discrepancies can be due to the locations of the flights and to the wind direction. The FAAM aircraft typically covered a horizontal distance of 100km during deep profiles, whereas the ULA covered much shorter distances and the flight tracks were directly above Banizoumbou (case 3) or Niamey (cases 1, 2, 4 and 5). Wind measurements obtained on ARM site at the altitude of 6.5 m above the ground show that the prevailing winds blow from the northwest direction ( $\sim 330^\circ$ ) on 26 and 28 January (cases 1 to 4) and from northeast direction ( $\sim 50^\circ$ ) on 1 February, which is typical of the Harmattan wind blowing over the Sahel in the dry season. Although the winds generally blew from the North, thus carrying mineral dust particles, a north-westerly wind can also bring a local contribution of anthropogenic aerosols because Niamey airport is located South-East from the Niger capital.

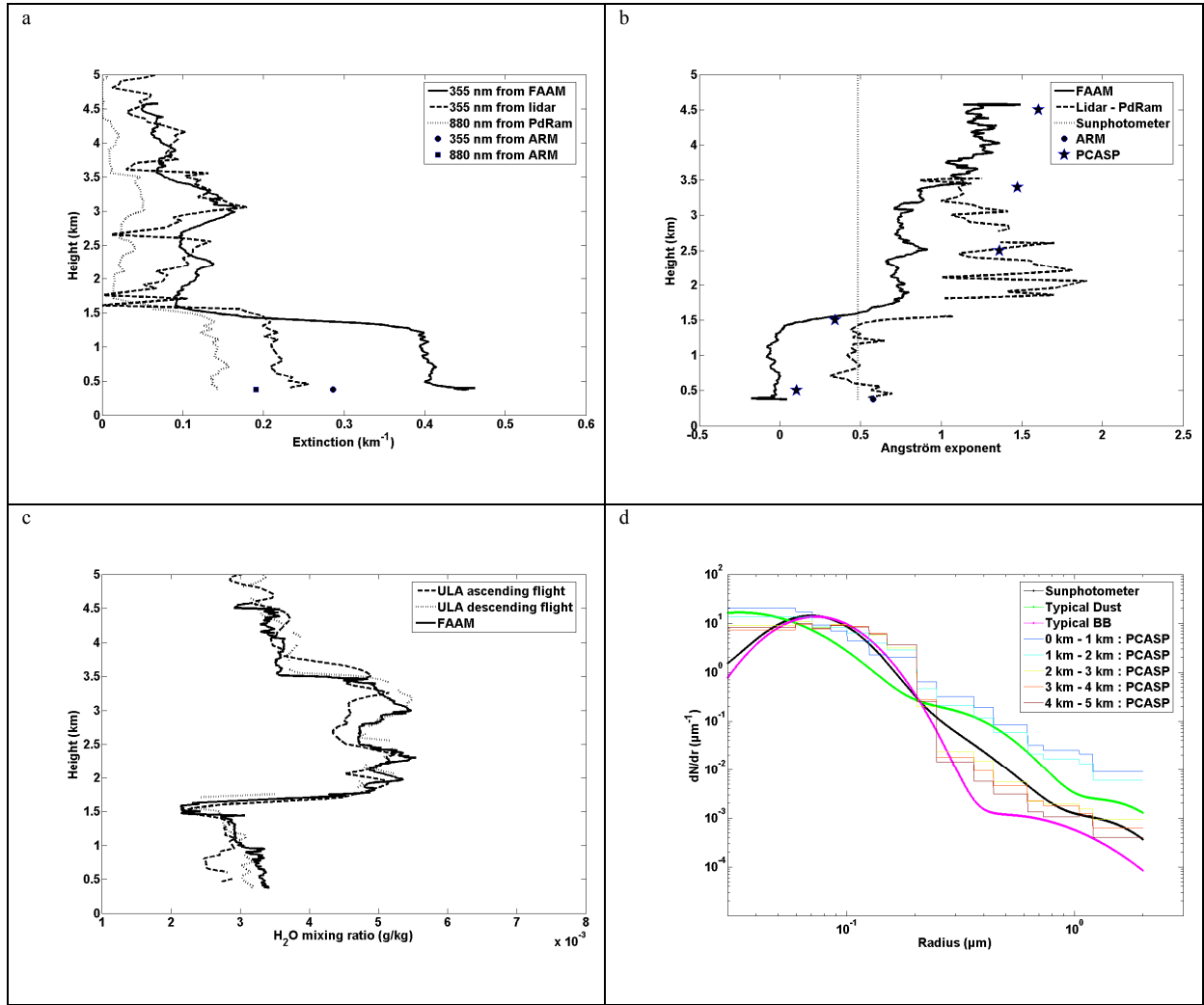


Fig. 3: Same as Fig. 1 for case 3.

Pollution with such a local origin superimposes to the dust cloud and can explain Angström exponent values slightly greater than 0 that have been observed on cases 1 to 4. This turns out to be a local phenomenon in Niamey, which is not representative of situations encountered in Banizoumbou where AERONET station is located.

### 3.2 Aerosol size distributions from FAAM PCASP and AERONET

The differences in aerosol properties between the dust and biomass-burning aerosol layers are partly related to differences in the number size distributions, as observed by the PCASP instrument on the FAAM aircraft (Fig 1d, Fig 2d, Fig 3d, Fig 4d and Fig 5d). The size distributions presented in Fig 1d, Fig 2d, Fig 3d, Fig 4d and Fig 5d have been normalized and averaged over layers 1000 m thick, because the data is too noisy without some averaging. Every FAAM profile shows a similar structure in number size distributions and a general decrease in coarse particle concentrations (with radii  $< 0.3\mu\text{m}$ ) with altitude.

AERONET volume size distribution retrieved from Dubovik inversion algorithm (Dubovik et al., 2000) have been converted in number size distribution and are also shown on Fig 1d, Fig 2d, Fig 3d, Fig 4d and Fig 5d. The AERONET retrieval is representative of the total aerosol column. AERONET measurements performed during 2006 and 2007 in Banizoumbou have also been used to extract typical size distributions for dust (40 cases found), selected by an Angström exponent lower than 0.2 and a single-scattering albedo larger than 0.92, and for biomass-burning particles (52 cases found) selected by an Angström exponent larger than 0.8 and a single-scattering albedo lower than 0.85 at 355 nm. The corresponding “typical” size distributions have been modelled by log-normal distributions and plotted on Fig 1d, Fig 2d, Fig 3d, Fig 4d and Fig 5d. In biomass-burning layer, no coarse mode was observed: aerosols are dominated by small particles, between 0.05 and 0.3  $\mu\text{m}$  in radius ( $r$ ). AERONET typical biomass-burning log-normal distribution represents the predominant fine mode, containing 99% of the total number of particles. It has a modal radius of  $\sim 0.08\mu\text{m}$  with a standard deviation of 1.4.



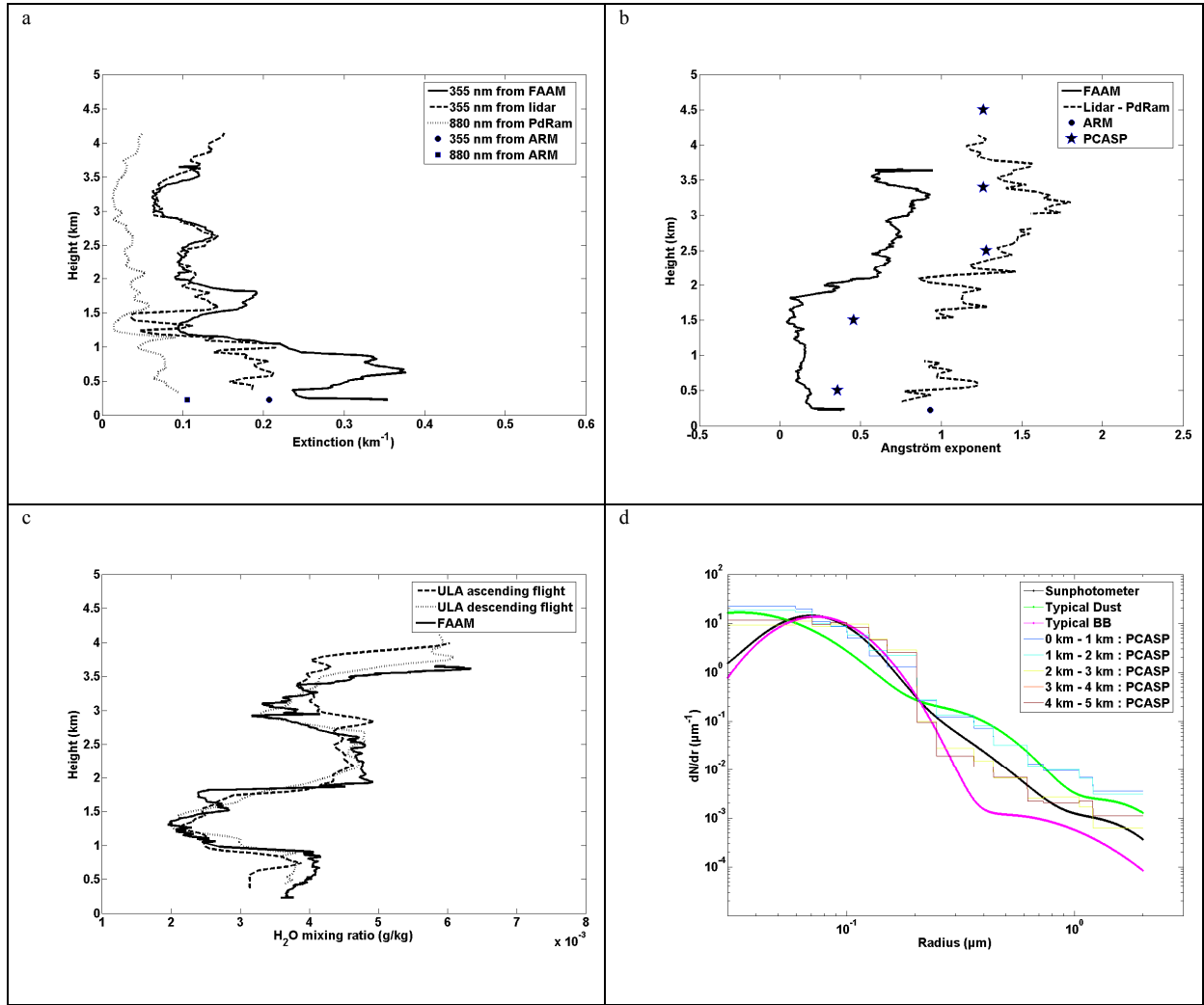


Fig. 4: Same as Fig. 1 for case 4.

The typical biomass-burning aerosol size distribution exhibits a sharp drop in size distribution between  $r \sim 0.15$  and  $r \sim 0.3$   $\mu\text{m}$ , whereas the typical dust size distribution has a more continuous distribution with more dominant second and third modes. The typical dust log-normal distribution includes three modes: the first one with a mean radius  $r \sim 0.05$   $\mu\text{m}$  and a standard deviation of 1.8 representing 94 % of the particles, a second located at  $r \sim 0.3$   $\mu\text{m}$  and a third one for coarse particles at  $r \sim 1.6$   $\mu\text{m}$ , both having a standard deviation of 1.6.

A good agreement is found between these typical size distributions and aircraft measurements, except for case 5 where a disagreement can be noticed in the smaller number concentrations of both second and coarse mode derived from AERONET retrievals when compared to the aircraft data. For all the case studies, the daily local AERONET size distribution is located between the typical size distributions of dust and biomass-burning aerosols, as one would expect since the atmosphere always contained both dust and biomass burning aerosol layers. These results suggest that it is necessary to clearly distinguish between dust and biomass-burning properties in

radiative transfer models to assess the radiative forcing of multi-layered structure of aerosols.

### 4. Determination of aerosol optical properties and surface albedo

#### 4.1 Aerosol complex refractive index (ACRI) determination

Measurements from the ULA, FAAM and AERONET have been used to retrieve ACRI using a variety of approaches. Each approach leads to a unique set of values for ACRI.

##### 4.1.1 Approach 1 (A1)

The determination of both real and imaginary parts requires two constraints. In approach A1 we have used the aerosol extinction coefficient and the BER at 355 nm as constraints. The principle of the retrieval method has already been described in Raut and Chazette (2007) and was applied to airborne measurements of vertical aerosol profiles in Paris (Raut and Chazette, 2008).

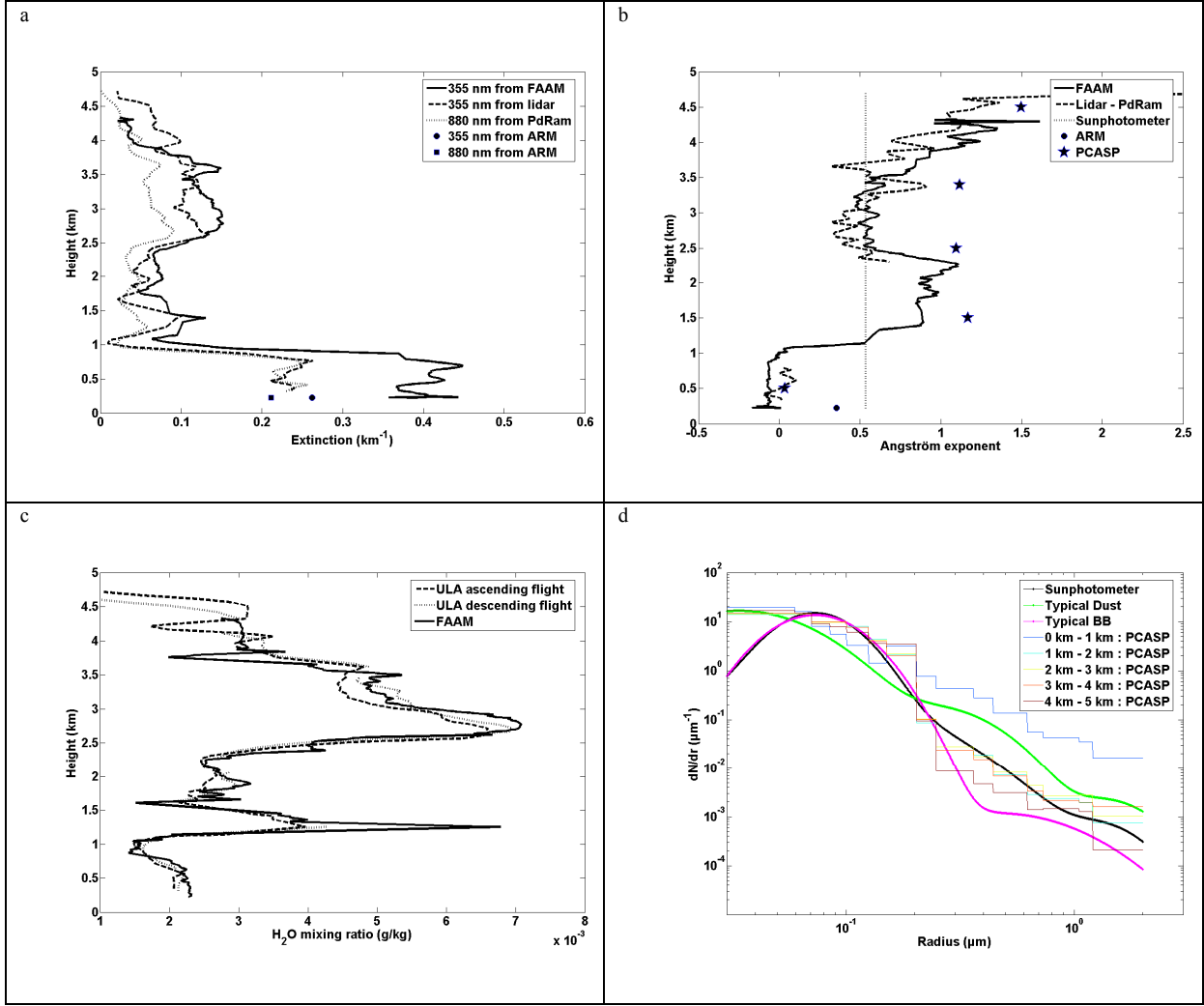


Fig. 5: Same as Fig. 1 for case 5.

Here, the methodology is quite similar but has been improved enabling both the real and the imaginary parts of ACRI to be derived in the same step. As described in Sect. 3, the first five kilometres of the atmosphere have been divided in five sections to allow the averaging of size distributions. At each height level, two look-up tables are built from a Mie model using the size distribution measured by the PCASP at the given altitude. A set of realistic ACRI values are used; real part are assumed to vary from 1.42 to 1.65 and imaginary parts are assumed to vary from  $10^{-4}$  to 0.4. One of the look-up tables contains values of the extinction coefficient and the other contains values of BER. The solution is a unique ACRI value that provides the same extinction coefficient as that measured by the LAUVA in horizontal shooting mode, and the same BER as the one retrieved by Chazette et al. (2007) as a function of altitude. BER values ranged from  $0.025 \pm 0.006 \text{ sr}^{-1}$  in the dust layer to  $0.008 \pm 0.003 \text{ sr}^{-1}$  in the biomass-burning layer. The ACRI result is given by the ACRI value at the intersection of the extinction coefficient and BER curves on Fig. 6. Note that BER is mainly

sensitive to the imaginary part of ACRI, whereas the extinction coefficient is more sensitive to the real part of ACRI.

#### 4.1.2 Approach 2 (A2)

A similar approach has been taken with the FAAM measurements but the scattering coefficient and single scattering albedo are used as constraints for the ACRI retrieval process. Calculations were performed to create a look-up table of scattering coefficients, real part sensitive, and a look-up table of  $\omega_s$ , principally driven by the imaginary part. When convergence was possible, this method provided a unique solution to ACRI imaginary and real parts in a similar manner to the A1 approach. The curve for aerosol scattering coefficient is given by a solid line on Fig. 6 and the curve for  $\omega_s$  is given by a dotted line on Fig. 6. Their intersection provides the ACRI determined from FAAM measurements.

#### 4.1.3 Approach 3 (A3)

ACRI is routinely retrieved from inversions of AERONET sunphotometer clear sky Almucantar scans of radiance (Dubovik et al., 2002).

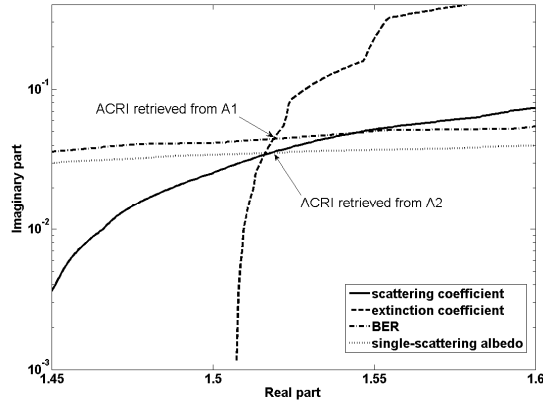


Fig. 6: Illustration of ACRI retrievals from methods A1 and A2: ACRI couples satisfying both measured extinction coefficient and BER in retrieval method A1, and satisfying both scattering coefficient and single-scattering albedo in retrieval method A2.

#### 4.1.4 Approaches 4 (A4) and 5 (A5)

ACRI retrieval is not always possible since the aerosol load is too low (above 4 km for 28th January and 1st February) or because the size distribution cannot be efficiently determined, mainly in the dust layer. Pinnick et al. (1976) indeed reported that the scattering may be modelled with some success using Mie code for spherical particles of particle size parameter (ratio of the particle circumference to the wavelength) less than about 5. For larger particles Mie theory can be used to model the near forward scattering, but at non-forward angles Mie theory misestimates the scattering. The radius measured by the PCASP may therefore be erroneous for large particles, since Mie scattering theory is implicitly used to derive the radius from the intensity of scattered radiation measured by the PCASP and this assumes that all particles are spheres. It is well known that mineral dust particles are predominantly non-spherical (Dubovik et al., 2006), which contributes to the particle miss-sizing.

As already mentioned in Sect. 3.1, scattering coefficients measured by the nephelometer can also be affected by the use of Mie theory in correction factors. Koepke et al. (1988) showed that in desert aerosol the nonspherical particles systematically increase the equivalent spherical side scatter with a maximum around a scattering angle of  $120^\circ$ , while around  $160^\circ$  the difference between scattering functions of spheres and nonspheres is small. In our study, the large and well-marked minimum at  $\sim 120^\circ$  in the scattering phase function of spherical particles is not present in simulations when spheroids particles are used. Hence, the case of spherical particles corresponds to a minimum for extinction and scattering cross-sections. We have to bear in mind that this result is weakly dependent on the average size parameter and does not necessary apply to all

possible size distributions. We have also to notice that, in our study, the scattering is overestimated close to  $180^\circ$  when assumption of spherical particles is done. The resulting scattering coefficient from airborne nephelometer is thus highly overestimated. In contrast, the extinction coefficient derived from lidar signal is slightly underestimated in comparison with the modelled one from size distribution. Chazette et al. (2007) stated that the relative uncertainty of the ULA-derived extinction is about 10% mainly due to signal noise and deviations in horizontality. The associated uncertainty in BER was 25%.

These reasons explain why algorithms developed for A1 and A2 approaches have never given any result in the dust layer, except for case 4 (Table 2). In the literature, studies taking into account the nonspherical shape of the particles can be found: aerosols might be spheroids, Chebyshev particles, cylinders (Mishchenko, 1991), or spheres containing voids representing particles occupied by cracks and holes (Pinnick, 1976). We tried to model the aerosols as nonspherical shapes rather than spherical particles, but no differences were found between the results from the Mie model with spherical particles and Mishchenko T-matrix code (Mishchenko et al., 1996) using prolate and oblate particles uniformly distributed over all the possible aspect ratios. This finding is contrary to the results of Perrone et al. (2004). However, Mishchenko et al. (1996) suggested that this phenomenon can occur when large numbers of randomly orientated particles in the sampling chamber are averaged, leading to a smaller error than for individual particle counting. It may be also due to the uncertainties in our measurements, especially of size distribution, and the lack of knowledge on dust morphology. Thus, only Mie code is used in the following. It should be noted that this simplification may not lead to significant errors for a climate forcing calculation since integration over the entire hemisphere is performed (Mishchenko et al., 1997).

Because of these difficulties two alternative approaches have been established to determine ACRI values in dust layers. The first alternative is to use a typical dust-like size distribution from AERONET (see Sect. 3.2) along with ULA optical measurements of both BER and aerosol extinction coefficient (Approach 4, A4). The second alternative is to use the local size distribution measured by the PCASP at the lowest altitude level and try to find the consistent ACRI in Mie code with extinction coefficient and  $\omega_b$  values observed on the surface (ARM site) (Approach 5, A5). This is similar to the A2 approach described in Sect. 4.1.2 except that the retrieval is constrained by ARM measurements of extinction coefficient and  $\omega_b$  rather than FAAM measurements.

## 6. Application au transfert radiatif

Table 2: ACRI values retrieved at 355 nm in 1km-thick layers from the ground (ARM data) to a height of 5 km for both A1 and A2 approaches. ACRI retrievals from AERONET inversion (A3) over the whole column have also been included, as well as a typical value deduced from a pure dust case.

		Case 1	Case 2	Case 3	Case 4	Case 5
Altitude	Approach	26 <sup>th</sup> January	26 <sup>th</sup> January	26 <sup>th</sup> January	28 <sup>th</sup> January	1 <sup>st</sup> February
Ground	A5	-	-	1.52 – 0.007 i	1.58 – 0.007 i	-
0 - 1	A1	-	-	-	1.48 – 0.008 i	-
	A2	-	-	-	-	-
1 - 2	A1	-	-	-	1.52 – 0.053 i	-
	A2	1.49 – 0.008 i	1.45 – 0.008 i	-	-	1.57 – 0.016 i
2 - 3	A1	1.53 – 0.049 i	1.54 – 0.048 i	-	1.55 – 0.051 i	1.60 – 0.058 i
	A2	1.53 – 0.025 i	1.51 – 0.022 i	-	1.53 – 0.022 i	-
3 - 4	A1	1.52 – 0.045 i	1.56 – 0.049 i	1.47 – 0.038 i	1.53 – 0.045 i	1.49 – 0.047 i
	A2	1.51 – 0.031 i	-	1.45 – 0.028 i	1.62 – 0.022 i	1.53 – 0.019 i
4 - 5	A1	-	1.58 – 0.049 i	1.43 – 0.035 i	-	-
	A2	1.65 – 0.055 i	1.49 – 0.049 i	-	-	-
Column	A3	1.46 – 0.013 i	1.46 – 0.013 i	1.46 – 0.013 i	-	1.41 – 0.014 i
Dust-like	A4	-	-	1.48 – 0.008 i	-	-

### 4.2 Extinction coefficient, single-scattering albedo and asymmetry parameter

For each of the 206 wavelengths used in this study (equally spaced by  $\sim 2.7$  nm from 200 to 750 nm), vertical profiles of extinction coefficient, single-scattering albedo and asymmetry parameter have been assessed. In the A1 approach the extinction coefficient profiles have been determined from lidar-derived extinction coefficient profile at 355 nm and Angström exponent between 355 nm (LAUVA) and 880 nm (PdRam). For the A2 approach the same methodology has been applied with the Angström exponent for extinction, which was determined using a combination of PSAP and nephelometer data from FAAM aircraft (Sect. 3.1). Vertical profiles of single-scattering albedo and asymmetry factor have been obtained from Mie theory assuming the spectral independence of ACRI (Sect. 2.2.1). When ACRI retrieval did not converge to a solution, the ACRI at the nearest altitude has been used instead of it. The modelled Angström exponent retrieved from the PCASP size distributions has been added to Figs. 1 to 5 (panels b). Although it cannot serve to discuss the validity of the measured extinction and scattering coefficients (because the ACRI determination also needs those optical properties), it can be useful to show that the ACRI retrieval method does not trigger off significant bias in the Angström exponent. Finally, the A3 approach based on AERONET observations uses typical values for single-scattering albedo, asymmetry parameter and Angström exponent for biomass-burning and dust layers, as described in Sect. 4.1.3. These optical parameters are then interpolated over the whole wavelength spectrum. The vertical profile of the spectral

extinction coefficient has been provided by the extinction (at 355 nm) from the lidar, but normalized so that it has the same AOD (Sect. 3.1), and Angström exponent as AERONET in the considered layer.

### 4.3 Spectral surface albedo

We used MODIS BRDF model parameters to combine the black-sky (BSA) and white-sky (WSA) albedos as a function of optical depth and hence calculate “actual” ( $alb_{surf}$ ) or blue-sky albedos. This calculation was based on a look-up table containing values of the fraction of diffuse light provided by MODIS website and established with the help of the 6S code (Second Simulation of the Satellite Signal in the Solar Spectrum, Vermote et al., 1997). The fraction of diffuse light  $f$  changes with solar zenith angle  $\theta$ , optical depth AOD, and band wavelength  $\lambda$ . Spectral blue-sky albedos used in this study for radiative assessments have then been calculated by the equation:

$$alb_{surf}(\theta, \lambda, AOD) = WSA(\lambda) \cdot f(\theta, \lambda, AOD) + BSA(\theta, \lambda) \cdot (1 - f(\theta, \lambda, AOD)) \quad (1)$$

## 5. Aerosol optical properties and surface albedo results

### 5.1 ACRI results and discussion

Table 2 summaries ACRI values retrieved in 1 km thick layers from the ground to a height of 5 km for both ULA and FAAM datasets. In the following subsections, the standard deviations

given are due to the variability of the dataset. Notwithstanding sensitivity analyses based on a Monte Carlo approach have been performed to assess the uncertainty in the calculation of ACRI. In the computation of ACRI, there is not any propagation of errors since both the real part and the imaginary parts are retrieved in a unique step. This is the result of a function minimization of two variables (Sect. 4.1.1). In the case of A1 approach, the uncertainty on ACRI is due to the uncertainties on the extinction coefficient, BER and size distribution. In the case of A2 approach, the uncertainty on ACRI is due to the uncertainties on the scattering coefficient, the single-scattering albedo and the size distribution. Hence, the fact that the different approaches do not constrain the optical parameters in the same manner has been implicitly taken into account. It is as if the isopleths of Fig. 6 were surrounded by error bands. The total uncertainty is given by the surface delimited by the intersections of those bands. This could not be represented on Fig. 6 as the uncertainties on the size distribution correspond to a translation of the isopleths. Monte Carlo approaches have given a total uncertainty of 0.03 (0.04) on the real part and 0.006 (0.012) on the imaginary part of ACRI in case of A1 (A2) approach. In this particular case, A1 approach more effectively constrains ACRI values but we have to notice that this does not apply to all cases. The errors on ACRI due to the uncertainties of the measurements are lower than ACRI dataset variability, which is consequently significant.

### 5.1.1 In biomass-burning layer

The retrieval model reached convergence in most of the cases for the atmospheric layers above 2 km, i.e. in biomass-burning layers. In general, a good agreement is found for the real part of ACRI between A1 and A2. Not surprisingly, this result can be explained by the good correspondence of extinction coefficients determined by the lidar and airborne nephelometer in the biomass-burning layer. From approach A1, the mean real part of ACRI over the whole period has been assessed to  $1.53 \pm 0.04$ . The variation of real part is slightly larger for the A2 approach and the mean real part is close to  $1.54 \pm 0.06$ . The main discrepancies are observed for case 3, where the retrieved values of ACRI are lower for the A1 and A2 approaches. This discrepancy may be linked to uncertainty in the total number of particles measured by the PCASP. Two artefacts also occur in the retrieval as a result of limitations in the aircraft data. In case 4 there is no nephelometer data above 3.7 km (Fig 4), leading to a possible overestimated real part for A2 approach between 3 and 4 kilometers where an elevated biomass-burning layer is observed by both LAUVA and PdRam measurements. The second artefact concerns the particles between 4 and 5 km for case 1. The aerosol concentration was low and the PCASP, nephelometer and lidar are not able to accurately characterise the

aerosol. In the literature, real parts of ACRI for biomass burning aerosol range from 1.5 to 1.6 at visible wavelengths, as reported by the AERONET measurements in Remer et al. (1998). For instance, Haywood et al. (2003c) found a value of 1.54 by applying the Maxwell-Garnett mixing rule to measurements of aerosol chemical composition. Yamasoe et al. (1998) reported a value of  $1.53 \pm 0.04$  at 438 nm using Sun/Sky data measured by the AERONET radiometers in Brazil.

The imaginary part of ACRI is generally less well known than the real part of ACRI. Values of imaginary part derived from A1 ( $0.047 \pm 0.006$ ) are significantly higher than imaginary parts provided by A2 ( $0.029 \pm 0.013$ ). The large variability in A2-derived imaginary parts is due to large variations in single-scattering albedo values measured from FAAM; these varied from 0.79 to 0.91. This variability is mainly attributed to variability in the proportion of biomass burning aerosol and dust and variability in the black carbon content of the biomass burning aerosol component (Johnson et al. 2008a). It is also important to bear in mind that some of the variation of single scattering albedo may be due to uncertainties in absorption measurements by the PSAP occur during the conversion of light transmission through the filter into absorption coefficient. A1-retrieved imaginary parts are less variable than A2 values since imaginary parts are predominantly governed by BER, which is almost constant in biomass-burning layer over Niamey (Chazette et al., 2007). Values of 0.01 – 0.04 were found by several investigators: Li and Mao (1990), Westphel and Toon (1991), Lenoble (1991), Anderson et al. (1996). During the SAFARI campaign, Haywood et al. (2003c) found 0.025 for fresh biomass-burning aerosols and 0.018 in aged biomass-burning plumes at 550 nm, in accordance with the value 0.021 reported by Dubovik et al. (2002) in Africa savannah in Zambia. Guyon et al. (2003) calculated lower values (0.013) but aerosols in Amazonian forest were measured during periods where ambient relative humidity was high (up to 80 %). During INDOEX Léon et al. (2002) retrieved an imaginary part of 0.03 for aerosol mainly originating from agricultural biomass burning. More recently, authors found higher imaginary parts in biomass-burning layers. Using a conservative value for the imaginary part of the index of elementary carbon (Haywood et al., 2003c), Schkolnik et al. (2007) found a reasonable fit between chemically-derived ACRI and optically-derived ACRI with the mean value  $1.52 - i 0.042$  in Brazilian biomass-burning plumes. Wandinger et al. (2002) showed an excellent agreement between remote sensing and in-situ measurements in the center of a biomass-burning plume, yielding to rather high ACRI, ranging from 1.56 – 1.66 in real part and 0.05 – 0.07 in imaginary part in the visible domain.

If we assume that the biomass aerosols are an internal mixture between soot, organic matter and water soluble compounds then

it is possible to assess the proportion of soot in the aerosol. Volz (1973) gives ACRI of  $1.75 - i 0.47$  and  $1.53 - i 0.008$  for soot and water soluble compounds, respectively. Water soluble and organic compounds have similar ACRI (Chazette and Liouise, 2001). Therefore, using the relation defined in Horvath et al. (1998), the soot proportion in the biomass aerosol can be assessed as 8 %. Ackerman and Toon (1981), Faxvog and Roessler (1978) give a higher value for the imaginary part of ACRI of soot, close to 0.66, which would lead to an estimated soot proportion of about 6 %.

### 5.1.2 In dust layer

Below 2 km, the retrieval model converged to a solution for ACRI for only a few cases. For 26th January, the ACRI retrieval algorithm has given a result from the A2 approach, and indicates smaller values for ACRI than in the upper layers, particularly for the imaginary part (0.008). However, the averaging of the size distribution between 1 and 2 km, implicitly introduced a mixing between biomass-burning aerosols and dust, located below 1.5 km. Consequently, they are not typical ACRI values for mineral dust particles. As indicated in Sect. 4.1.4, we tried two alternative methods for retrieving dust ACRI using either a typical dust size distribution from AERONET (A4), or ARM surface measurements (A5). Convergence of the retrieval was obtained for cases 3 and 4 on 26th and 28th January using the ARM dataset (A5) and for case 3 when the AERONET typical dust size distribution was used (A4). It should be noted, however, that retrieving size distribution information for coarse particles is difficult with a maximum wavelength of 1020 nm and may result in relatively large errors in the AERONET retrieval. The four ACRI values determined in the dust layer (by any of the approaches described above) have been averaged together providing a mean dust ACRI of  $1.52 (\pm 0.04) - i 0.008 (\pm 0.001)$  that will be used hereafter. A sensitivity study on the PCASP uncertainties was performed using Monte Carlo simulations based on 200 Gaussian random realizations. Uncertainties as large as 30% in the PCASP measurements lead to uncertainties of 0.003 on the imaginary part and 0.08 on the real part, which is not surprising given that size distribution mainly governs scattering (particularly in forward direction).

The mean value retrieved in our study ( $1.52 - i 0.008$ ) is very close to the value of  $1.53 - i 0.008$  established by Volz (1973) at the same wavelength; the imaginary parts have identical values. Indeed, single-scattering albedo or BER (governing the imaginary part) are less affected by errors linked to the assumption of spherical particles than scattering or extinction coefficients, which are more strongly linked to the real part. Our retrieved real part value (1.52) agrees in general with available dust measurements but the variability in the techniques and in dust composition lead to a dispersion of about 0.05 in the literature (Patterson et al. 1977; Carlson and Benjamin 1980;

Sokolik et al. 1993; Sokolik and Toon 1999). By employing the value 1.53 for the real part in remote sensing, Tanré et al. (1999) showed a good consistency of radiative transfer computations with measurements. It is also in accordance with several models, which suggest that the real part of the refractive index of dust is 1.53 for the visible spectral region (Shettle and Fenn 1979; WMO 1983; Koepke et al. 1997). The imaginary part of ACRI is more difficult to determine as Sokolik and Toon (1996) show variations over 3 orders of magnitude for different mineral dust components. Our retrieval (0.008) is consistent with the value given for the visible spectrum by several models (Shettle and Fenn, 1979; WCP, 1986). The ACRI of  $1.56 - i 0.006$  reported by Patterson et al. (1977) is broadly similar. We have to note however that studies showed lower imaginary parts, e.g. 0.003 by Levin et al. (1980) or 0.0015 by Haywood et al. (2003b).

### 5.1.3 AERONET retrieval of ACRI over the atmospheric column

ACRI values retrieved from the A3 approach are also listed in Table 2. These values are from AERONET retrievals in Banizoumbou and are integrated over the entire atmospheric column. ACRI values representative of “pure” biomass-burning aerosols or “pure” dust have been extracted, together with their corresponding single-scattering albedo and asymmetry factor. AERONET ACRI retrievals are often lower than other results and close to the complex refractive index of water (Raut and Chazette, 2007); indeed AERONET gave values of  $1.39 - i 0.016$  for biomass-burning aerosols and  $1.44 - i 0.002$  for mineral dust. The retrieval for typical biomass-burning particles gave a single-scattering albedo of 0.8 and an asymmetry parameter in the range 0.74-0.75 and the retrieval for typical dust gave a single scattering albedo of 0.95 and an asymmetry parameter ranging from 0.79 to 0.80 at 355 nm.

## 5.2 Single-scattering albedo and asymmetry parameter

### 5.2.1 Single scattering albedo ( $\omega_0$ ).

At a wavelength of 355 nm,  $\omega_0$  range from 0.78 to 0.82 (0.79 to 0.87) in the biomass-burning layer and from 0.9 to 0.92 (0.94 to 0.96) in the dust plume for A1 (A2) during the whole period. Smaller values obtained in the A1 approach are not surprising since imaginary parts of the ACRI were larger, suggesting there would be higher absorption. The A3 approach gives a value of 0.8 for typical biomass-burning particles, which is the same as for the A1 approach. For typical dust the A3 approach gives  $\omega_0 \sim 0.95$ , which is similar to the value retrieved from the A2 approach. From the 26<sup>th</sup> January to the 1<sup>st</sup> February, AERONET-derived  $\omega_0$  was 0.84-0.85 at 438 nm and 0.90-0.91 at 871 nm. All the approaches suggest that the single-scattering albedo of dust increases with wavelength (0.97-0.98 at 550 nm for A2), in

contrast to the biomass-burning layers where no net wavelength dependence can be detected (Bergstrom et al., 2003; Dubovik et al., 2002). This result is in accordance with Meloni et al. (2005) that showed values for dust from 0.81 at 415.6 nm to 0.94 at 868.7 nm, and for biomass-burning aerosols from 0.82 at 415.6 nm to 0.80 at 868.7 nm.

Values of  $\omega_b \sim 0.8$  found in this study for the biomass-burning layers indicate a rather high influence of absorption of the particles and are consistent with the FAAM aircraft estimates from DABEX reported in Johnson et al. (2008a) showing  $\omega_b \sim 0.82$  at 550nm, although we are reporting values at 355nm. These findings are comparable with many other studies. For example, fresh smoke particles showed  $\omega_b \sim 0.76$  during SAFARI-2000 (Haywood et al., 2003c), 0.74-0.84 in Brazil (Reid and Hobbs, 1998). Aged biomass-burning aerosols have been observed with slightly higher values: 0.83-0.92 during SAFARI (Haywood et al., 2003c), 0.80-0.84 in the case of Brazilian fires (Hobbs et al., 1997; Reid and Hobbs, 1998; Reid et al., 1998). Anderson et al. (1996) reported values of 0.79-0.81 for dry particles in African and Brazilian outflows over the South Atlantic. Heigher values of 0.85-0.90 were found for boreal fires (Radke et al., 1988) and for biomass-burning episodes in Southern Africa at 400 nm (Eck et al., 2003). During INDOEX, Randriamiarisoa et al. (2004) reported values of  $\omega_b$  between 0.89 and 0.93 at 400 nm.

The mean value retrieved for dust from the A1 approach is small at 355 nm (0.91) but in agreement with other studies. For example, Moulin et al. (2001) determined the dust absorption and estimated  $\omega_b$  in the range 0.82-0.90 in the blue. Kaufman et al. (2001) obtained 0.88 on the coast of Senegal. From the A2 approach  $\omega_b$  was significantly higher (0.95), which is closer in agreement with value from the SHADE campaign (Haywood et al., 2003b). Tanré et al. (2001) derived  $\omega_b$  from AERONET measurements at the Banizoumbou site, finding  $0.95 \pm 0.03$  at 441 nm. Sokolik and Toon (1996) presented results on the spectral dependence of  $\omega_b$  for various dust models. They found  $\omega_b$  around 400 nm are in the range 0.62-0.95 and linked these large differences in  $\omega_b$  values to size distribution and ACRI.

### 5.2.2 Asymmetry parameter ( $g$ ).

In this study,  $g$  ranges from 0.71 to 0.73 (0.68 to 0.73) in the biomass-burning layer and from 0.73 to 0.75 (0.72 to 0.74) in the dust plume following A1 (A2) at 355 nm. The A3 approach gave values in the range 0.74-0.75 for typical biomass-burning particles and values ranging from 0.79 to 0.80 for typical dust. Haywood et al. (2003b) reported  $g \sim 0.74$ -0.76 at 550 nm and  $g \sim 0.64$  at 450 nm in dust layers indicating a strong spectral dependence of  $g$  with  $g$  decreasing with increasing wavelength.

## 5.3 Surface albedo

The spectral surface albedo at Niamey is reported on Fig. 7 at 12:00 UTC (Universal Coordinated Time, deviating from local noon from less than one hour), averaged over the latitudes 13.47 and 13.48°N and the longitudes 2.16 and 2.18°E. A sharp increase in spectral surface albedo is observed in the shorter wavelengths, which is in accordance with the visually red-brown surface. We can note relatively small values in the visible spectrum: 0.12 at 550 nm.

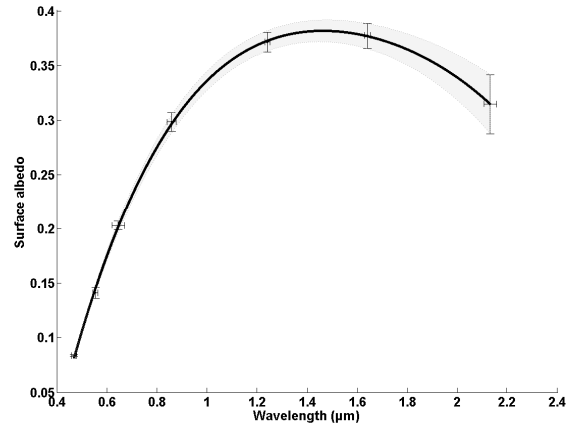


Fig. 7: Surface albedo at 1200 local time in Niamey as a function of wavelength. The horizontal error bars represent the width of MODIS spectral bands. The vertical error bars are determined from the standard deviation obtained by averaging over the latitudes 13.47 to 13.48°N and the longitudes 2.16 to 2.18°E.

## 6. UV-Visible aerosol radiative forcing

### 6.1 J(NO<sub>2</sub>) simulations

Downwelling and upwelling NO<sub>2</sub> photolysis rate coefficient have been simulated for each approach (A1, A2 and A3) using 16-stream discrete ordinates approaches and compared to optical actinometer measurements.

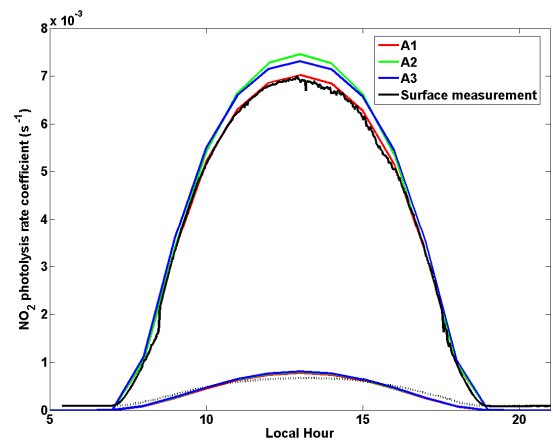


Fig. 8: Downwelling and upwelling NO<sub>2</sub> photolysis rate coefficient computed from A1, A2 and A3 approaches using 16-

stream discrete ordinates method. Black curves represent the  $J(\text{NO}_2)$  measured by the optical actinometer in Niamey.

Indeed, while the 4-stream discrete ordinates method may be appropriate to simulate the irradiances, usually 4 streams are not sufficient for the calculation of photolysis rates, which requires a larger number of streams. Results have been plotted on Fig. 8 for case 5 because the 1st February was the only day presenting clear-sky conditions during the whole day. No significant differences can be observed in the modelled  $J(\text{NO}_2)_u$  between the different approaches since values are relatively small. The discrepancies between modelled and observed photodissociation rates have not further been investigated, but can be partly due to the larger uncertainties on upward fluxes than on downward fluxes. The discussion below rather focuses on the downwelling photodissociation rate. The measured  $J(\text{NO}_2)_d$  is slightly noisy but the general shape of the curve is easily discernible. All simulations follow the same curve, particularly in the morning (08:00 – 11:00) and evening (16:00 – 19:00). For smaller solar zenith angles differences clearly occur between the modelled and measured curves. Modelled  $J(\text{NO}_2)_d$  are found higher than the observed one, suggesting that the downward flux has not been sufficiently attenuated through its path in biomass-burning and dust layers in all the simulations. The best simulation of the photolysis rate of  $\text{NO}_2$  molecule has been obtained using the A1 approach with ULA-derived optical properties since the modelled  $J(\text{NO}_2)$  photolysis rates superimpose on the measured one within 1%, whereas the A3 approach gives within 5% discrepancy and the A2 approach gives within 12% discrepancy. This may be because the greater scattering coefficient in the dust layer was not compensated for by the low value of ACRI imaginary part found in the biomass-burning layer from the A2 approach. This low absorption in the biomass-burning layer does not attenuate the direct downwelling flux enough. Comparing A1 and A3, the main differences come from  $\omega_0$  and  $g$  because, in case of A3, spectral extinction profiles have been determined using ULA-derived extinction coefficient at 355 nm and Angström exponent for typical dust or biomass-burning particles. This suggests a good determination of both  $\omega_0$  and  $g$ , and therefore of ACRI from A1. We have to note that, in this particular case, the differences observed in comparison with the 4-streams method are not clearly significant. This is linked to a compensation effect between the higher number of photons backscattered by dust in the upward direction and their absorption into the biomass-burning layer. Hence, for further discussions on irradiances in this paper, the A1 approach and 4-stream discrete ordinates method will be taken as the reference. This enables an assessment of the importance of a reliable synergy in providing input parameters for radiative calculations.

### 6.2 Radiative forcing results and discussion

UV-visible radiative forcing results have been averaged over 24 hours for the five cases studies, the three optical property retrieval approaches and the 4-stream discrete ordinates method. Results have been summarized in Table 3. The corresponding daily evolutions of radiative forcings have been plotted on Fig. 9. The AODs corresponding to these calculations are shown in Table 1 (A1 uses ULA AOD, A2 uses FAAM AOD, A3 uses AERONET AOD).

#### 6.2.1 Major features

The daily averages reported on Table 3 are lower than the instantaneous radiative forcings on Fig. 9, since the integration over the whole day also takes into account the nighttime period. The global retrieved uncertainty on the radiative impacts is only of order  $3 \text{ W/m}^2$ , which is comparable to the day-to-day variability in TOA and BOA radiative impacts. Such a small uncertainty is due to a compensation of uncertainties in both the size distribution and the complex refractive index. As a matter of fact, when size distribution is underestimated (resp. overestimated), the retrieved ACRI, and particularly the real part, is overestimated (resp. underestimated) so as to converge towards the measured constraints of scattering/extinction coefficients, single-scattering albedo and BER. The resulting change in the spectral single scattering albedo and asymmetry parameter is small. Therefore, the errors on PCASP measurements do not clearly affect the spectral retrieved optical properties and as a consequence the radiative effects. Finally, the uncertainty in radiative effects due to uncertainties in the measurements is of the same order of magnitude in the dust layer than in the biomass burning layers.

The following results are given for the reference method. The mean value over the 5 case studies of the solar energy depletion at the surface by both dust and biomass-burning aerosols is  $-21.2 (\pm 1.7) \text{ W/m}^2$ . During daytime, when the solar zenith angle is lower than  $70^\circ$ , the radiative impact on the surface reaches  $-60 \text{ W/m}^2$  (Fig. 9). The surface energy budget must be balanced, and thus latent and sensible fluxes will reduce to compensate for this decrease in the net radiative flux. This can affect convective processes and cloud formation. At the TOA, the radiative effects are close to zero (mean value of  $-1.4 \text{ W/m}^2$ ):  $\Delta F_{\text{TOA}}$  is generally negative, indicating a potential cooling of climate, but can become slightly positive with the A1 approach for cases 4 and 5. However these (absolute) values are lower than in previous studies. Johnson et al. (2008b) found a TOA radiative forcing of  $-9.8 \text{ W/m}^2$  from FAAM aircraft measurements averaged over the DABEX experiment. The A2 results give very similar results to Johnson et al. (2008b) including the near-infrared wavelengths, which is encouraging since they are based on FAAM data.



## 6. Application au transfert radiatif

Table 3: Radiative forcing results averaged over 24 hours for the five case studies, for the three ACRI retrieval approaches and the 4-stream discrete ordinates radiative transfer method.

		Case 1	Case 2	Case 3	Case 4	Case 5
A1	$\Delta F_{TOA}$	-2.2	-3.0	-2.6	0.2	0.4
A1	$\Delta F_{BOA}$	-20.1	-22.9	-20.4	-19.5	-23.2
A1	$\Delta F_{ATM}$	17.9	19.9	17.8	19.7	23.6
A1	$RFE$	33.1	30.2	31.8	36.5	54.9
A2	$\Delta F_{TOA}$	-9.8	-10.1	-9.4	-8.1	-7.8
A2	$\Delta F_{BOA}$	-25.3	-25.3	-23.9	-17.4	-19.7
A2	$\Delta F_{ATM}$	15.5	14.9	14.5	9.3	11.9
A2	$RFE$	18.9	19.9	19.9	17.2	19.8
A3	$\Delta F_{TOA}$	-2.8	-3.3	-3.4	-1.8	-1.8
A3	$\Delta F_{BOA}$	-18.7	-22.6	-19.3	-17.0	-15.5
A3	$\Delta F_{ATM}$	15.9	19.3	15.9	15.2	13.7
A3	$RFE$	24.5	29.7	24.4	28.1	29.8

During the SAFARI-2000 campaign in South Africa the normalized  $\Delta F_{TOA}$  by unit optical depth at 500 nm was estimated to be between -3 and -5 W/m<sup>2</sup> (Myhre et al., 2003), which is closer to our results from the A1 and A3 approaches (AOD~0.4 at 500 nm in our study), although higher results should be expected in our study given the presence of dust particles that absorb less efficiently than biomass burning particles. The low radiative forcings at TOA over Niamey can be partly attributed to relatively high absorption properties in the biomass-burning layer (Sect. 5.2.1), preventing a part of the upwelling diffuse flux from returning to space. This is confirmed by the large atmospheric forcing, with a mean value of  $19.8 \pm 2.3$  W/m<sup>2</sup>, indicating the absorption of solar radiations in the atmosphere.  $\Delta F_{ATM}$  can reach 60W/m<sup>2</sup> during the day (Fig. 9). Accordingly, Pace et al. (2005) found a daily average atmospheric radiative forcing varying between 21.6 and 25.7 W/m<sup>2</sup> for forest fire over the Mediterranean basin in the same wavelength interval (0.3 – 0.8  $\mu$ m) and a similar columnar amount of aerosols (AOD~0.4 at 416 nm).

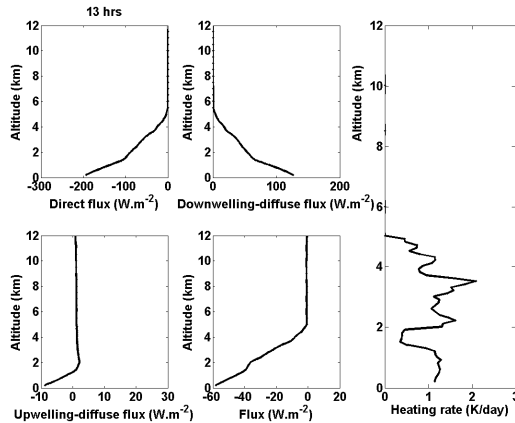


Fig. 10: Vertical profiles of the net radiative fluxes (direct, downwelling-diffuse, upwelling-diffuse and total) obtained on the 26<sup>th</sup> January (case 2) at 13:00 local time. Aerosol heating rate is also plotted as a function of height with a vertical resolution of 100 m.

Fig. 10 shows that the atmospheric heating rate from the aerosol is not homogenous in the vertical column. When the sun is high, the additional heating rate associated with aerosol can reach 2.2 K/day in the biomass-burning layer, despite the moderate AOD of this layer (about 0.3). This is a consequence of the low single-scattering albedo of the biomass burning aerosol. The maximum value of aerosol heating rate is similar to the 2.05 K/day reported by Keil and Haywood (2003) for biomass-burning particles (AOD~0.25 at 550 nm) and 2.2 K/day by Léon et al. (2002) following INDOEX (AOD~0.6 at 532 nm). At 20° solar zenith angle, Pace et al. (2005) showed that the biomass-burning layer produced a significant increase in the heating rate by 2.4 K/day in the first kilometre and 1.5K/day over this altitude. Pilewskie et al. (2003) reported two cases of biomass-burning aerosols during the SAFARI-2000 campaign: the instantaneous shortwave heating rates were 4 K/day in Zambia during intense haze episodes (AOD~1.5 at 500 nm) and 1.5 K/day in Mozambique for less hazy conditions (AOD~0.4 at 500 nm). The absorption of shortwave radiation in the dust layer is lower in this study (of order 1K/day when the solar zenith angle is close to 30°), but we have to bear in mind that our study focuses on UV-visible radiation.

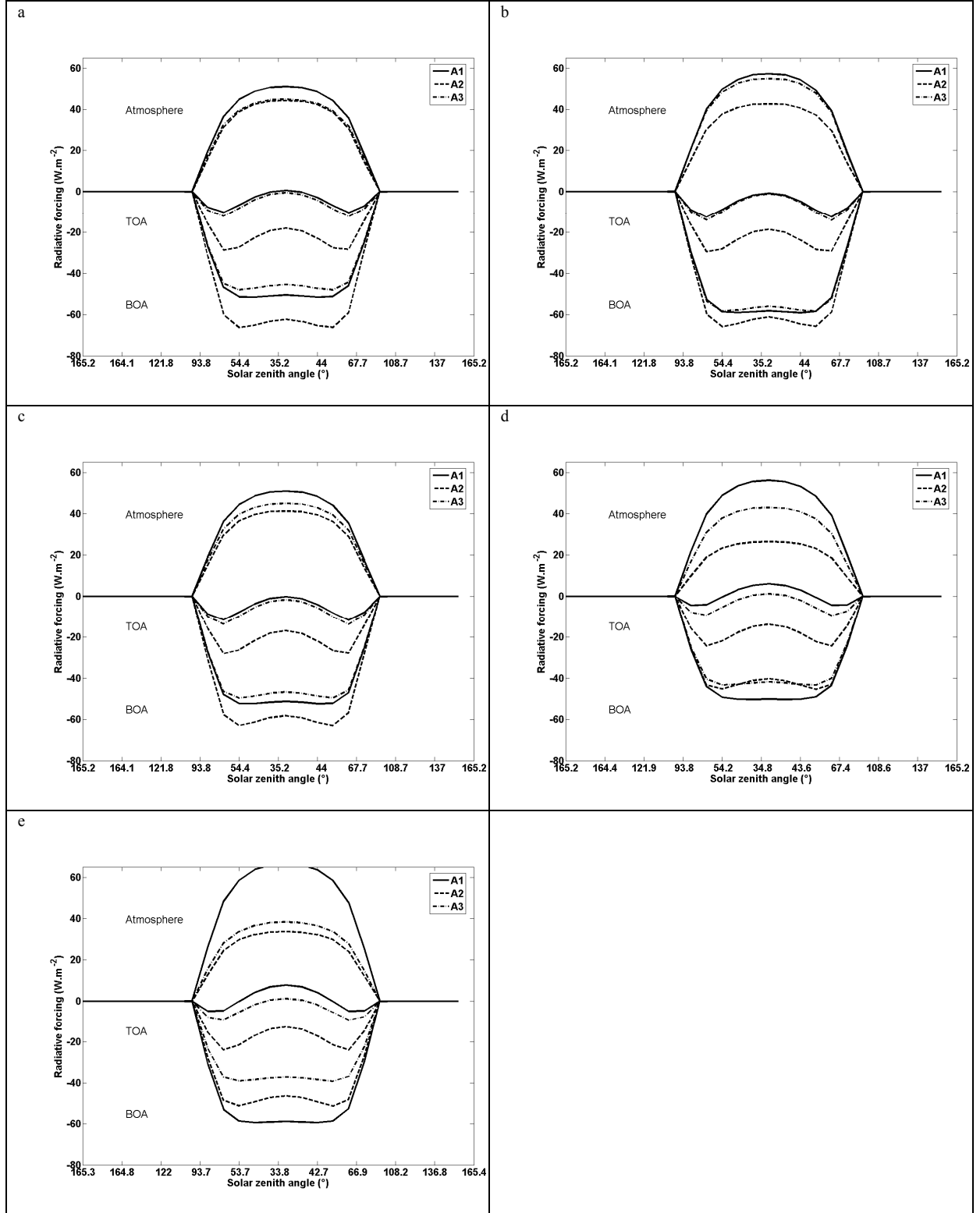


Fig. 9: Daily evolution of radiative forcings at the surface, TOA and in the atmosphere for the three approaches. A1, A2 and A3 using the 4-stream discrete ordinate method.

### 6.2.2 Daily evolution

The radiative forcings of aerosols depend of the solar zenith angle, as shown in Fig. 9. The radiative impact of aerosol is larger at 10:00 and 16:00 local hour than at 13:00, i.e. for high

solar zenith angles. Everyday the maximum (in absolute value) is obtained at  $65^\circ$  for  $\Delta F_{TOA}$  and at  $55^\circ$  for  $\Delta F_{BOA}$ . At the TOA, this effect is principally enhanced by the presence of dust particles. The large particles of dust scatter a large part of the

incident light in the forward direction. As the solar zenith angle increases, a larger portion of the forward hemisphere includes the region of the upwelling scattered irradiance (Meloni et al., 2005), and hence  $\Delta F_{TOA}$  increases with solar zenith angle up to  $65^\circ$ . At the BOA, the increase of the solar zenith angle enhances the photon path length and thus the attenuation by aerosols, up to a threshold where the atmosphere becomes optically thick. These results are in accordance with many past studies, e.g. Haywood and Shine (1997), Boucher et al. (1998), Myhre and Stordal (2001) and Horvath et al. (2002).

### 6.2.3 Comparison between the case studies

The day-to-day variation in TOA and BOA radiative impacts is small, about  $4 \text{ W/m}^2$ . In the reference calculation (A1 approach, 4-stream method)  $\Delta F_{BOA}$  ranges from  $-23.2$  to  $-19.5 \text{ W/m}^2$  and  $\Delta F_{TOA}$  ranges from  $-3$  to  $0.4 \text{ W/m}^2$  (Table 3). The small day-to-day variation occurs because the extinction coefficient profiles were very close from one day to another and the aerosol optical properties barely differed either.  $\omega_o$  values were  $0.88 - 0.90$  on the 28<sup>th</sup> January and 1<sup>st</sup> February and only slightly lower ( $0.86$ ) on 26<sup>th</sup> January. A stronger  $\omega_o$  of biomass-burning particles leads to a larger  $F_{diff}^d$  (more scattering) but also to a less attenuated  $F_{dir}^d$  (less absorption). Hence, the small day-to-day variations are related to a compensation between these two counterbalancing effects. The lowest values of  $\Delta F_{TOA}$  are also obtained for cases 4 and 5 where a lower AOD reflects less solar radiation back to space. Variations in the atmospheric forcing are small, generally lower than 25%. A more judicious parameter is the daily radiative forcing efficiency (RFE), which is the additional atmospheric radiative forcing per unit optical depth at 355 nm. Values reported in Table 3 show that RFE is nearly constant in the five cases, meaning that the atmospheric radiative forcing is nearly linear in the AOD. It is worth noting that the RFE value retrieved from A1 in case 5 is unexpectedly high due to a large value for ACRI ( $1.60 - i0.058$ ). The ACRI value found between 2 and 3 km height (Table 2) was applied between 1 and 2 km, because the algorithm was not convergent in this layer. This unusually high value for ACRI associated with a low AOD ( $0.43$ , Table 1) considerably enhances the RFE.

### 6.2.4 Comparison of the different approaches

**Comparison between A3 and A1.** In comparison with the reference calculation (A1, 4-stream method), the use of input parameters derived from AERONET stations (approach A3) does not introduce significant errors in radiative forcing calculations. In our study, we used similar extinction coefficient profiles for A1 and A3 with only small differences due to differences in the Angström exponents used for typical dust and

biomass-burning particles. Optical properties derived from A3 were also close to those derived from A1, especially in biomass-burning layers (Sect. 5.2). In the dust layers the single scattering albedos differ slightly between A3 and A1 ( $\omega_o$  of  $0.95$  instead of  $0.92$ ) making the A3 dust more diffusive of solar radiation.

Therefore,  $F_{dir,BOA}^d$  are very similar, but  $F_{diff}^d$  are a bit higher for A3. It partly compensates the attenuation of the direct flux; hence  $\Delta F_{BOA}$  is lower. At the TOA very small differences can be noted in Fig. 9 between A3 and A1. The dust layer slightly scatters more photons back to space in A3, increasing  $\Delta F_{TOA}$  by a small degree.

**Comparison between A2 and A1.** The differences in radiative forcings between these two approaches are principally due to differences in single scattering albedos and extinction coefficients in the dust layer. In contrast, retrieved values for extinction coefficient, single-scattering albedo and asymmetry factor are very similar in biomass-burning layers. However, in the dust layer, extinction coefficient is higher by a factor of 1.5 to 2 in A2 than in A1, and  $\omega_o$  is also larger (see Sect. 5.2). Below 1.5 km, the importance of the radiative forcing can be mainly attributed to a compensation of two opposite effects: in A2,  $F_{dir,BOA}^d$  is indeed more attenuated but  $F_{diff,BOA}^d$  is enhanced. In cases 1, 2 and 3, the former effect dominates, resulting in a higher  $\Delta F_{BOA}$ . Conversely in cases 4 and 5, the latter effect is dominant, suggesting a lower  $\Delta F_{BOA}$ . This result can be explained by the lower AOD encountered in the dust layer for 28<sup>th</sup> January and 1<sup>st</sup> February, leading to a small attenuation of  $F_{dir,BOA}^d$ , without significantly modifying

$F_{diff,BOA}^d$  due to the same scattering properties. At the TOA, the radiative forcing is significantly higher by about  $7-8 \text{ W/m}^2$  in daily average (Table 3) and up to about  $20 \text{ W/m}^2$  during daytime (Fig. 9). This is linked to  $F_{diff,TOA}^u$ , which is considerably enhanced at the top of the dust layer and almost not attenuated above it through a potential absorption of biomass-burning aerosols. It is worth noting that in the approach A1,  $F_{diff}^u$  is very weak, and can be negative (cases 4 and 5), due to a dust layer barely reflecting the incoming radiation ( $\omega_o$  of  $0.90-0.92$ ) and to imaginary parts of biomass-burning ACRI twice larger than in A2 approach.

### 6.2.5 Representativeness of radiative calculations

In a more general context, it is important to assess the representativeness of our results.

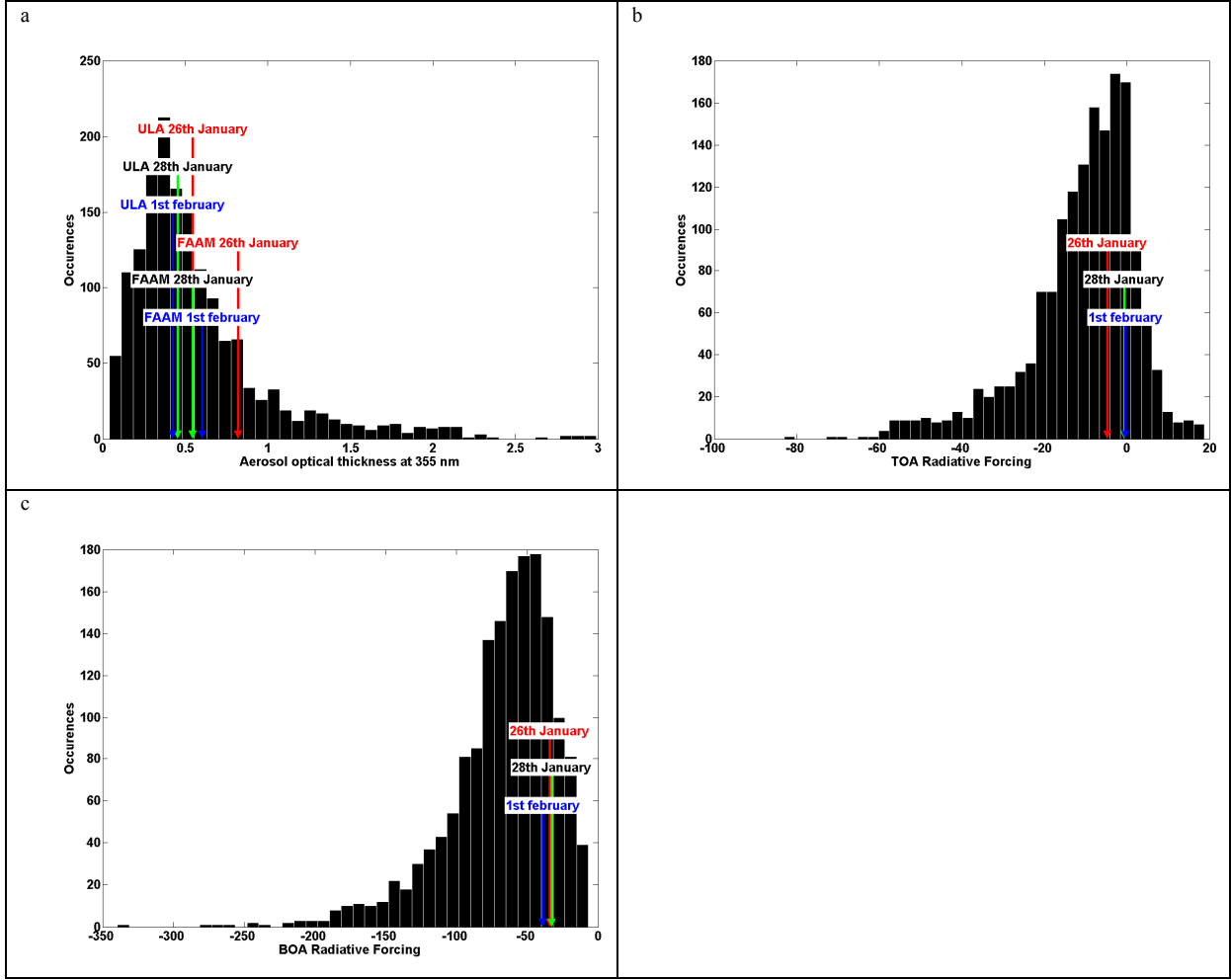


Fig. 11: Histograms of the AOD at 355 nm (a), TOA radiative forcing (b), and BOA radiative forcing (c) for clear-sky conditions over the years 2006 and 2007 at Banizoumbou, based on AERONET Almucantar inversions. The daily mean values for the case studies on 26<sup>th</sup> January (red), 28<sup>th</sup> January (black) and 1<sup>st</sup> February (blue) are indicated.

We used AERONET inversion products obtained over Banizoumbou for clear sky conditions between 2006 and 2007. AERONET directly provides BOA and TOA radiative forcings from broad-band fluxes in the shortwave domain from detailed retrieved aerosol properties. The AERONET AOD data has been interpolated to 355 nm. AODs and TOA and BOA radiative forcings are given in Fig. 11, along with values found in our study. The mean AOD from A1 and A2 approaches and the mean daily TOA and BOA radiative forcings for the 26<sup>th</sup> January, 28<sup>th</sup> January and 1<sup>st</sup> February are located in the centre of the almost Gaussian curve, indicating that our radiative calculations, which are in the range  $-3$  to  $0$   $\text{W/m}^2$  for  $\Delta F_{TOA}$  and  $-23$  to  $-19$   $\text{W/m}^2$  for  $\Delta F_{BOA}$  are representative of the region for typical conditions (AOD values are close to 0.5-0.6).

### 6.3 Sensitivity analysis

The sensitivity analysis is only conducted for the reference calculation, which involves approach A1 and the 4-stream discrete ordinates method.

#### 6.3.1 Influence of optical depth

The radiative effects described in the previous sections arise from a combination of both dust and biomass-burning aerosols, depleting the net solar radiation at TOA and BOA. The respective impacts of dust and biomass-burning have been discussed but need further investigation. Radiative forcings can differ from the values given in Table 3 when optical properties of the various aerosol layers change or when the vertical distribution of these layers is modified. Fig. 11a shows that the AOD over Niger is usually less than 1. For the period considered in this paper, dust AOD represents about 40% of the total AOD, the complementary portion being attributed to biomass-burning aerosols. Note that this percentage becomes 70% in A2 due to the overestimation of scattering in the dust layer (Johnson et al., 2008b).

## 6. Application au transfert radiatif

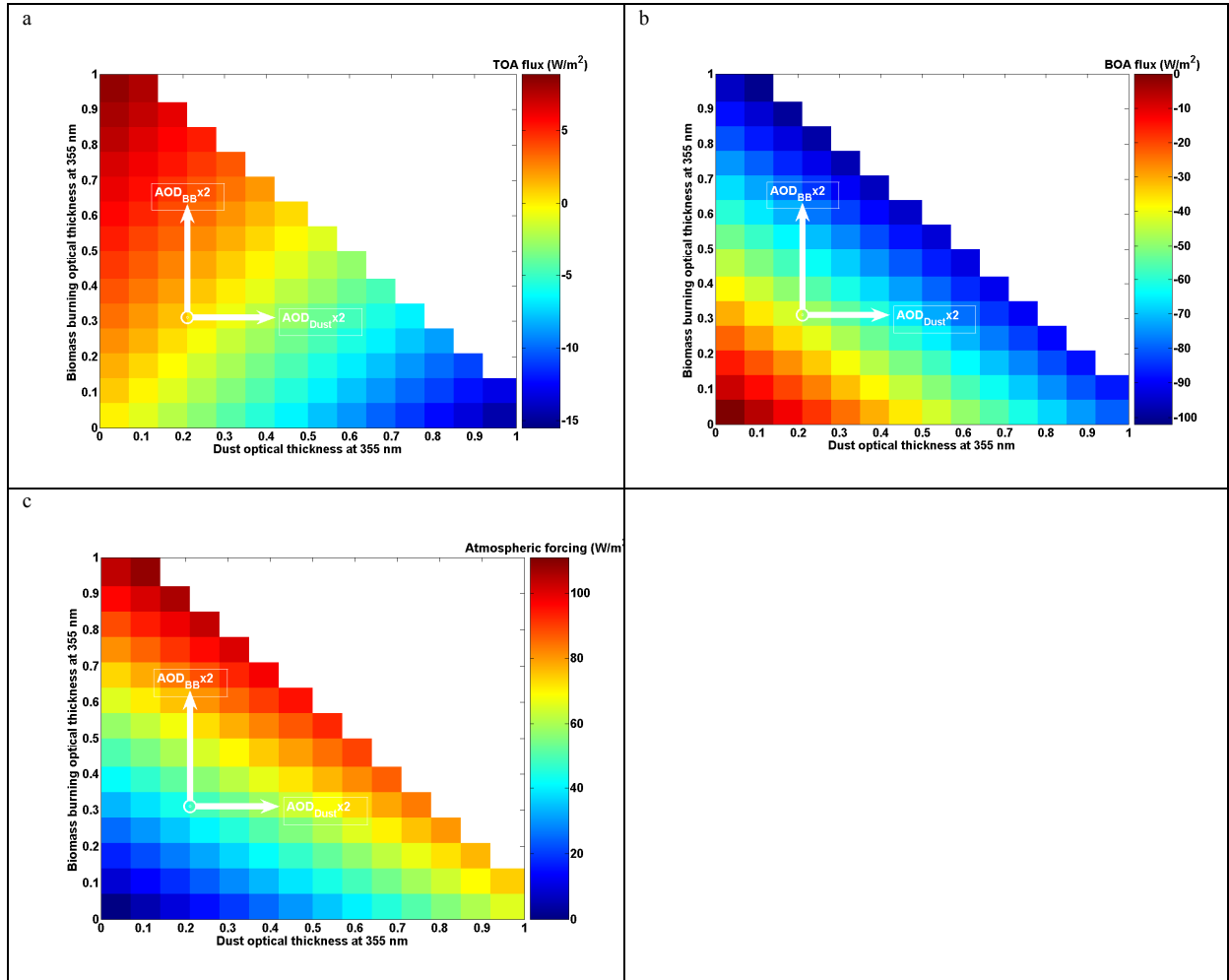


Fig. 12: Radiative forcings at the TOA (a), BOA (b) and in the atmosphere (c) as a function of dust and biomass-burning AOD at 13:00 local time in case 1, when the total AOD does not exceed a value of 1.

Table 4: Radiative forcing results simulated when either the AOD of biomass-burning or dust particles has been set to zero, or the vertical positions of the aerosol layers have been inverted but the total AOD has remained constant. Optical properties are taken from the reference approach (A1).

		A1	A1 without BB layer	A1 without Dust layer	A1 inversion
Case 1	$\Delta F_{TOA}$	-2.2	-2.8	-0.3	-3.0
	$\Delta F_{BOA}$	-20.1	-7.9	-13.2	-21.1
	$\Delta F_{ATM}$	17.9	5.1	12.9	18.1
Case 2	$\Delta F_{TOA}$	-3.0	-3.6	-0.5	-3.8
	$\Delta F_{BOA}$	-22.9	-10.7	-13.6	-23.7
	$\Delta F_{ATM}$	19.9	7.1	13.1	19.9
Case 3	$\Delta F_{TOA}$	-2.6	-3.2	-0.3	-3.2
	$\Delta F_{BOA}$	-20.4	-10.1	-11.5	-21.6
	$\Delta F_{ATM}$	17.8	6.9	11.2	18.4
Case 4	$\Delta F_{TOA}$	0.2	-1.3	0.9	-0.5
	$\Delta F_{BOA}$	-19.5	-3.5	-16.6	-20.1
	$\Delta F_{ATM}$	19.7	2.2	17.5	19.6
Case 5	$\Delta F_{TOA}$	0.4	-1.6	1.3	-0.3
	$\Delta F_{BOA}$	-23.2	-5.8	-18.4	-24.0
	$\Delta F_{ATM}$	23.6	4.2	19.7	23.7

Fig. 12 shows the consequences on  $\Delta F_{BOA}$ ,  $\Delta F_{TOA}$  and  $\Delta F_{ATM}$  (at 13:00 local hour in case 1) of varying the AOD of the dust and biomass-burning layers whilst keeping the sum of their optical depths lower than 1. The radiative forcings corresponding to the reference measurements of case 1 are illustrated with a white circle. At the TOA, the radiative forcing seems to be influenced only by the relative proportions of dust and biomass-burning aerosols, suggesting a compensation of backscattering and absorption effects. At the BOA and in the atmospheric column, the radiative forcings are influenced more strongly by the total AOD, as indicated by the coloured bands with a slope close to -1 on Fig. 12.

When dust AOD is doubled,  $\Delta F_{TOA}$  decreases by 3 W/m<sup>2</sup>,  $\Delta F_{BOA}$  decreases by 18 W/m<sup>2</sup> and therefore  $\Delta F_{ATM}$  increases by 15 W/m<sup>2</sup>. This significant increase in atmospheric absorption is produced partly by absorption in the dust layer since its  $\omega_0$  is not huge (0.90-0.92) and partly by enhanced absorption in the biomass-burning layer because of an increase in the number of photons backscattered by mineral dust. In fact, the influence of dust on the heating rate is really visible only in the dust layer itself. In the biomass-burning layer, a doubling of dust AOD triggers off an increase in the heating rate of only 0.1-0.2 K/day (not shown) due to an additional absorption of the backscattered radiation in the upward direction.

When biomass-burning AOD is doubled,  $\Delta F_{TOA}$  increases by 4 W/m<sup>2</sup>,  $\Delta F_{BOA}$  decreases by 35 W/m<sup>2</sup> and therefore  $\Delta F_{ATM}$  increases by 39 W/m<sup>2</sup>. The effects of high imaginary parts of biomass-burning ACRI resulting in absorption are clearly visible: the increase in atmospheric absorption is greater for the biomass burning aerosol than for dust. This suggests that  $\Delta F_{TOA}$  could reach a positive value of 5 W/m<sup>2</sup> during episodes when high plumes of fresh biomass-burning are advected over Niger, which would indicate a potential warming of climate during these episodes.

Radiative calculations have also been performed when either dust or biomass-burning AOD is set to zero. The daily average values for these simulations are reported in Table 4 for the five cases. In the absence of biomass-burning aerosols,  $|\Delta F_{TOA}|$  is enhanced by about 0.6 to 2 W/m<sup>2</sup> depending on the day, since the upwelling-diffuse flux is absorbed less. Without dust,  $\Delta F_{TOA}$  is nearly zero: the effects of backscattering, mainly linked to the surface albedo in this case and of absorption in the biomass-burning layer, cancel. At the surface, the radiative forcing decreases in both cases, but the impact of biomass-

burning aerosols on  $\Delta F_{BOA}$  is highly predominant. They can contribute to a  $\Delta F_{BOA}$  of -18.4 W/m<sup>2</sup> in daily average. The impact of the dust is more variable during the period, varying from -11 to -8 W/m<sup>2</sup> when the layer height is 1.5 km (26<sup>th</sup> January) and from -6 to -3 W/m<sup>2</sup> when dust are confined in the first kilometre (28<sup>th</sup> January and 1<sup>st</sup> February).

### 6.3.2 Equivalent surface albedo for dust

Liao and Seinfeld (1998) indicated that the slope of the linear relation between radiative forcing and AOD (Fig. 12) depends on the surface albedo. They stated that RFE decreased with increasing surface albedo. This result is consistent with our observations. The surface albedo has been modified in our calculations and also the AOD of the dust layer has been varied, which acts in a similar manner to increasing the brightness of the surface when viewed from the point of view of the biomass burning aerosols higher in the atmosphere. This section assesses this equivalent increase in surface albedo generated by the dust layer.

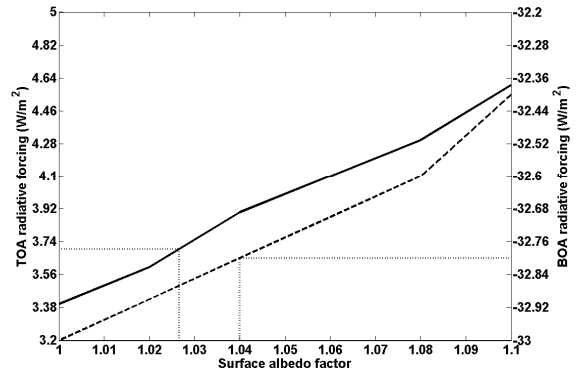


Fig. 13: Variation of the radiative forcings at 13:00 local time for case 1 at TOA (solid line) and BOA (dashed line) with a surface albedo multiplication factor for a layer of biomass-burning aerosols (AOD of dust set to zero). The dotted horizontal lines indicate the radiative forcing due to biomass-burning layers when considering that dust is included as part of the background state, and vertical lines give their corresponding surface albedo factor.

For these simulations, the radiative forcings due only to biomass-burning aerosols (AOD of dust set to zero, Table 4) are calculated for several values of surface albedo and are compared to the forcings due to only biomass-burning aerosols when considering that the dust layer to be part of the background state. Results for case 1 are plotted on Fig. 13 for calculations corresponding to 13:00 local time. Similar results are observed for other case studies / flights. At BOA, the sum

$F_{dir}^d + F_{diff}^d$  is  $\sim -40 \text{ W/m}^2$  at 13:00 local time. Neglecting scattering terms of second order, surface albedo acts only on  $F_{diff}^u$ . Hence, the stronger the surface albedo, the more negative  $F_{diff}^u$  and the lower  $|\Delta F_{BOA}|$ . This effect is slightly amplified after the biomass-burning layer up to the TOA. Thus, increasing surface albedo leads to an increase in  $\Delta F_{TOA}$  and a decrease in  $\Delta F_{BOA}$  in absolute values. Surface albedo needs to be enhanced by 4% (respectively 2.7%) so as to give the same value for  $\Delta F_{BOA}$  (resp.  $\Delta F_{TOA}$ ) as the reference values of biomass-burning radiative forcings determined when dust are included as part of the background state (Fig. 13). Those values do not really differ from BOA to TOA, indicating that the impact of the dust layer on the radiative forcing of an elevated biomass-burning layer can truly be considered as equivalent to an increase of the surface albedo by 3-4%.

### 6.3.3 Inversion of dust and biomass-burning layers

This section studies how an inversion of the vertical distribution of the aerosol layers would affect the previous results. For each case we reversed the observed vertical distribution by setting the biomass-burning aerosols below the mineral dust layer, without modifying the total AOD or the properties of dust or biomass-burning aerosol layers. The daily average forcings are summarized in the last column of Table 4. In absolute values, radiative effects increase by 0.7 for  $\Delta F_{TOA}$ , by 0.9 for  $\Delta F_{BOA}$  and by 0.2 for  $\Delta F_{ATM}$ . These results suggest that shortwave radiative forcings are somewhat sensitive to the vertical distribution of dust and biomass-burning aerosols. However, the sensitivity is different for BOA, TOA and atmospheric forcings. The magnitude of the changes are only of order 5% for  $\Delta F_{BOA}$  and are negligible for  $\Delta F_{ATM}$  (1%), but of order 30% for  $\Delta F_{TOA}$ .

Other studies have examined the role of vertical distribution on daily average shortwave radiative forcings at BOA and TOA. For example, Liao and Seinfeld (1998) found that, for cloud-free conditions, the radiative forcings both at the surface and at the TOA are not sensitive to the altitude of the dust layer. Meloni et al. (2005) confirmed that the TOA radiative forcing of particles characterized by low absorption depends weakly on the vertical profile (different profiles produce up to 10% variation on the daily average forcing), but added that the vertical distribution of absorbing particles strongly affects the radiative forcing at the TOA. This result is also consistent with Torres et al. (1998) who have shown that, in the case of low surface reflectivity and non-

absorbing aerosols, the aerosol layer height has a small effect on the backscattered radiance at 380 nm at the TOA. However, for moderately absorbing particles, an aerosol layer near the surface is more effective than a layer in the mid troposphere in increasing the backscattered radiance.

In our study, the fact that the TOA radiative forcing is clearly sensitive to the vertical distribution is linked to the presence of absorbing biomass-burning aerosols. The vertical configuration of the aerosol layers permits the backscattering of solar radiation by mineral dust towards the more absorbing particles in the elevated biomass-burning layer above, thus reducing  $\Delta F_{TOA}$ .

In the reverse configuration, the dust layer acts as an umbrella reducing the downwelling flux of solar radiation in the biomass-burning layer below, thereby reducing the absorption of solar radiation by the biomass burning aerosol.

### 6.3.4 Impact of ACRI

This section investigates the influence of ACRI variation on radiative forcings. The sensitivity analysis is performed for the A1 approach in the case 3 and involves modifying the ACRI in the biomass-burning layer whilst maintaining the same ACRI in the dust layer since their determination was based on the data obtained on ARM site rather than from ULA data (Sect. 4.1.4).

A wide range of values for the real parts (1.45 to 1.65) and imaginary parts (0.02 to 0.05) of ACRI have been used for the sensitivity analysis, covering the range of possible values of ACRI for biomass-burning particles suggested in Table 2. Fig.

14 gives the values of  $\Delta F_{TOA}$ ,  $\Delta F_{BOA}$  and  $\Delta F_{ATM}$  at 13:00 local time for the various ACRI values. These results show significant changes in the radiative forcings. The dependency of radiative forcing on the imaginary part is more pronounced than the dependency on real part. For a given real part, radiative forcing varies by  $6 \text{ W/m}^2$ , both at the TOA and at the surface, when the imaginary part varies from 0.02 to 0.05. This represents a variation by about 12% in the surface radiative forcing but the relative sensitivity is substantially higher at the TOA. These results are in agreement with the results of Liao and Seinfeld (1998) who showed that for pure dust the TOA net forcing was more sensitive to the variation in the imaginary part than surface cooling. In our study, the huge sensitivity at the TOA associated with biomass-burning particles, can lead to positive or negative forcing. When the real part is higher, scattering effects are enhanced, leading to more solar radiation scattered up to space, and the negative radiative forcing becomes more important. Conversely, a strong imaginary part increases the absorption coefficient, contributing to a positive radiative forcing at the TOA, and an increase in the atmospheric radiative forcing. At the BOA, when the real part is higher, the radiative forcing is weaker, owing to an increased downwelling-diffuse flux.

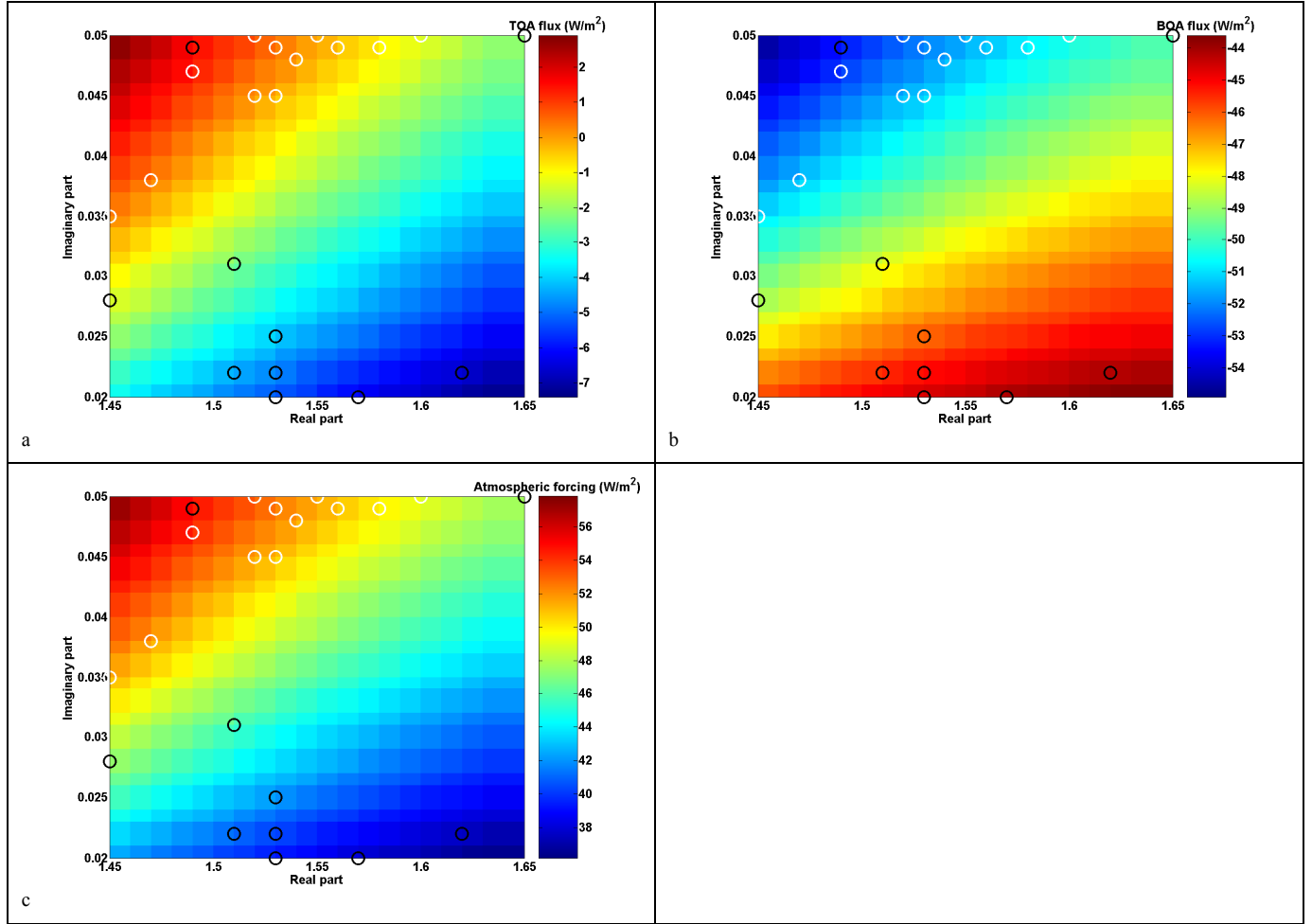


Fig. 14: Radiative forcing values at 13:00 local time for case 3 obtained at TOA (a), BOA (b) and in the atmosphere (c) for the various couples of possible ACRI values for biomass-the burning aerosol. The retrieved values of ACRI are shown as open circles coloured white for A1 and black for A2.

Fig. 14 also shows the retrieved values of ACRI for the A1 approach (in white) and A2 approach (in black) over the whole considered period. It is worth noting that all A1-derived ACRI values lead to similar radiative effects. The variability of retrieved values for ACRI appears to be a bit higher in the A2 approach.

### 7. Summary and conclusion

This study describes observations of aerosol microphysical and optical properties from a variety of platforms, including ground-based, airborne and integrated-column remote sensing measurements in the region surrounding Niamey, Niger, in the framework of AMMA-SOP 0. Observations have shown multi-layered structures where mineral dust were located from the surface to an altitude of 1-1.5 km and biomass-burning particles were found in elevated layers from 1.5km up to 5 km. Good agreement was found between lidar and airborne measurements

of extinction coefficient in the biomass-burning layers. Conversely discrepancies were found in the lower layers of dominated by dust aerosol. We attribute these discrepancies to errors in the measurements of non-spherical particles by nephelometer and particle sizer instruments. Lidar-derived extinction profiles were generally in accordance with aerosol optical thicknesses measured from the sunphotometer. ACRI is a crucial parameter governing both scattering and absorption effects and was determined from a synergy between the lidar and scatterometer on the ULA, the size distribution and optical properties measured onboard the FAAM aircraft, or AERONET retrievals from a case study of a dust layer. The optimal values of ACRI were  $1.53 (\pm 0.04) - i 0.047 (\pm 0.006)$  for biomass-burning aerosols and  $1.52 (\pm 0.04) - i 0.008 (\pm 0.001)$  in the dust layer. Corresponding single-scattering albedo values ranged from 0.78 to 0.82 in the biomass-burning layer and from 0.9 to 0.92 in the dust plume. Asymmetry parameters ranged from about 0.71 to 0.73 in biomass-burning layers and from 0.73 to 0.75 in mineral dust layers.



The retrieved optical properties and extinction profiles were used to perform radiative transfer calculations over Niamey in the UV-Visible range, as in e.g. Pace et al. (2005) or Meloni et al. (2005). Simulations of  $\text{NO}_2$  photolysis rate coefficient increased the confidence in the 4-stream discrete ordinates method associated with ULA dataset. The calculations gave a depletion of solar energy at the surface of  $-21.2 (\pm 1.7) \text{ W/m}^2$  as a daily average. At the TOA, the radiative forcing was slightly negative but very close to zero ( $-1.4 \text{ W/m}^2$ ). The corresponding atmospheric radiative forcing was found to be  $19.8 (\pm 2.3) \text{ W/m}^2$ . When the solar zenith angle is close to  $30^\circ$ , the additional atmospheric heating rate was of order  $1\text{K/day}$  but reached as high as  $2.2 \text{ K/day}$  in the peak of the biomass-burning layer. A 2-year record of AERONET measurements shows that these results, obtained for the period 26<sup>th</sup> January – 1<sup>st</sup> February, are representative for this region under typical AOD conditions.

Sensitivity analyses showed that the AOD of each aerosol layer (dust and biomass burning aerosol) had a strong influence on the radiative budget. In particular, setting the AOD of the dust layer to zero enabled us to assess the impact of the dust on the radiative forcing of the biomass burning layer. Mineral dust located below a more absorbing layer acts in a similar manner to an increase of surface reflectivity, by 3-4 % in our case. The radiative forcing is somewhat sensitive to the vertical distribution of aerosols; primarily, the TOA forcing is affected by the altitude of the biomass burning aerosol layer due to the strong absorption of solar radiation by the biomass burning particles. The magnitude of radiative forcing is very sensitive to the ACRI. The ACRI of biomass-burning aerosols plays a major role in the radiative forcing at the TOA because it determines the amount of absorption. Accurate determination of ACRI is therefore crucial for deducing optical properties.

In situ measurements and remote sensing observations of microphysical and optical properties, as well as surface albedo are needed for realistic radiative closure. Since dust and

biomass-burning aerosols can affect the radiation balance both near the source and far downwind, in regions where optical and chemical properties of the particles may vary, the determination of the optical parameters requires scrutiny, especially as these are required inputs in climate prediction models.

## 8. Acknowledgments

Based on a French initiative, AMMA was built by an international scientific group and funded by a large number of agencies, especially from France, UK, US and Africa. It has been the beneficiary of a major financial contribution from the European Community's Sixth Frame-work Research Programme. Detailed information on scientific coordination and funding is available on the AMMA International web site <http://www.amma-international.org>. This work was supported by the Centre National d'Etudes Spatiales (CNES). ASECNA personnel from Air Traffic Control and Meteorology at Niamey airport and the team of the AMMA Operation Centre at IRD-Niamey are greatly acknowledged for their logistical help. Ben Johnson from UK Met Office is particularly acknowledged for his fruitful assistance on the organization of the paper and English corrections. We thank Jim Haywood and Simon Osborne for providing with FAAM data. Joseph Sanak and François Dulac (LSCE) are acknowledged for their involvement in AMMA measurements. Anne Jefferson from NOAA/ESRL is acknowledged for providing with ARM data. We also thank especially Jacques Pelon, Cyrille Flamant, and the professional ULA pilot Franck Toussaint. Philippe Goloub, Didier Tanré, and Bernadette Chatenet are also acknowledged for the AERONET sunphotometer data.

## 6.6 Synthèse et conclusions

### 6.6.1 Propriétés optiques restituées des couches d'aérosols

L'impact radiatif combiné des aérosols d'origine désertique et des aérosols issus des feux de biomasse observés au Niger a été évalué lors de la saison sèche. Cette estimation a pu se faire grâce à une synergie instrumentale couplant des observations radiométriques au sol (photomètre, actinomètre optique), des observations aéroportées effectuées à bord de l'avion de recherche FAAM, et des observations de télédétection active aéroportées (lidar LAUVA). Les paramètres optiques des aérosols requis pour le calcul du forçage radiatif ont par conséquent été recherchés, avec une attention particulière sur l'estimation de l'indice complexe de réfraction. Ce paramètre a pu être évalué à partir de plusieurs méthodes originales de couplage entre les instruments. Par rapport à l'approche détaillée dans les Chapitres 4 et 5, la méthodologie a été ici améliorée en restituant les deux inconnues (parties réelle et imaginaire) en une étape unique. Le profil de BER a pu être déterminé de façon résolue dans la colonne d'air par la combinaison de mesures lidar aéroportées à visée horizontale et visée nadir. La connaissance du BER n'a donc pas nécessité la contrainte fournie par le photomètre solaire. Les données du photomètre constituent dans ce cas des outils indépendants permettant la validation des paramètres calculés. A 355 nm, les aérosols issus de la combustion de biomasse ont un ACRI de  $\sim 1.53(\pm 0.04) - 0.047(\pm 0.006)i$  ce qui conduit à  $\omega \sim 0.80(\pm 0.02)$  et  $g \sim 0.72(\pm 0.01)$ . Les poussières d'origine saharienne ont un ACRI de  $\sim 1.52(\pm 0.04) - 0.008(\pm 0.001)i$  ce qui conduit à  $\omega \sim 0.91(\pm 0.01)$  et  $g \sim 0.74(\pm 0.01)$  à 355 nm.

### 6.6.2 Forçages radiatifs associés

Au-dessus de Niamey, le forçage radiatif dans le domaine UV-Visible ne représente qu'une valeur entre -3 et 0  $\text{Wm}^{-2}$  à la tropopause mais un forçage beaucoup plus important est noté à la surface (entre -23 et -19  $\text{W.m}^{-2}$ ). Dans le cas d'aérosols peu absorbants, le forçage au TOA et le forçage à la surface sont peu différents. Dans le cadre d'AMMA, le forçage est beaucoup plus intense à la surface qu'au sommet de l'atmosphère. Les forçages amplifiés en surface et les faibles forçages au TOA peuvent être partiellement attribués à la capacité d'absorption élevée des particules issues de la combustion de biomasse. Ces dernières empêchent en effet une partie du flux diffus montant de retourner vers l'espace. Cela est confirmé par un important flux radiatif piégé dans l'ensemble des couches de la basse troposphère. La différence significative entre flux en surface et à la tropopause implique donc un échauffement de ces couches et une redistribution d'une grande partie de l'énergie solaire à l'intérieur de la couche atmosphérique. A partir des mesures lidar, la redistribution verticale de l'énergie solaire dans la basse et moyenne troposphère a pu être déduite. Un échauffement maximum de  $2.2 \text{ K.jour}^{-1}$  est observé au sein de la couche absorbante chargée en aérosols de feux de biomasse. Le budget énergétique à la surface doit alors être équilibré, ce qui engendre l'effet semi-direct. Cela met aussi en évidence une augmentation de la température de la première couche atmosphérique. Cet effet n'est pas dû uniquement aux particules de feux de biomasse mais aussi, pour une plus faible part, aux poussières désertiques qui, en concentrations suffisantes, peuvent aussi contribuer à un léger réchauffement de la couche atmosphérique. L'observation du gradient d'échauffement radiatif suggère une implication possible sur le cycle de l'eau : les flux de chaleur latente et sensible vont être réduits pour

compenser la diminution du flux radiatif net à la surface. Cela peut affecter les processus convectifs et la formation des nuages et peu se traduire par une réduction de la nébulosité. Il peut enfin y avoir un impact sur le cycle des aérosols en augmentant leur temps de résidence dans la basse troposphère.

### 6.6.3 Effets combinés des poussières désertiques et des aérosols de feux de biomasse

Les forçages radiatifs ainsi calculés sont représentatifs de la région de Niamey pour des conditions typiques caractérisées par des épaisseurs optiques de l'ordre de 0.5-0.6 à 355 nm. Ces valeurs sont celles généralement observées sur la région. Notre étude a permis de montrer que les forçages en surface et dans les couches atmosphériques sont fortement influencés par l'épaisseur optique totale. Au sommet de l'atmosphère en revanche, le forçage est principalement contrôlé par les proportions relatives de poussières désertiques et d'aérosols provenant de feux de biomasse. Cela suggère une compensation entre les effets de rétrodiffusion et d'absorption. L'épaisseur optique des particules issues des feux de biomasse a, de plus, un impact plus fort sur les forçages radiatifs que celle des poussières désertiques. Ce résultat est lié aux parties imaginaires de l'ACRI très élevées dans les couches supérieures chargées en aérosols de feux de biomasse, plus absorbants. Du point de vue du forçage radiatif exercé par ces couches d'aérosols issus de la combustion de biomasse en altitude, la couche de poussières désertiques, située à des altitudes inférieures, agit comme une augmentation de 3-4 % de l'albédo de surface. Elle favorise le forçage à la surface et réduit le forçage au sommet de l'atmosphère. Par leur albédo de simple diffusion élevé, les poussières désertiques contribuent beaucoup à la rétrodiffusion et donc à refroidir le système Terre-Atmosphère en augmentant l'albédo planétaire. Notons cependant que du point de vue du forçage radiatif exercé par l'ensemble des couches de particules, les poussières minérales ne se comportent pas seulement comme une augmentation de la réflectivité de surface : elles jouent également un rôle dans l'absorption du rayonnement et donc dans l'échauffement atmosphérique.

Les positions respectives des deux couches n'ont pas une influence significative sur le forçage atmosphérique et sur le forçage en surface. A l'inverse, le forçage radiatif au TOA est fortement affecté par l'altitude des aérosols absorbants issus des feux de biomasse. Une couche absorbante en altitude peut en effet absorber le rayonnement solaire rétrodiffusé par les basses couches diffusantes et par conséquent réduire le flux diffusé montant. Le forçage radiatif au TOA est alors atténué.

### 6.6.4 Conclusions sur l'estimation rigoureuse des indices de réfraction

L'étude a enfin montré l'importance d'une restitution précise de l'ACRI. Dans la couche d'aérosols de feux de biomasse, c'est la partie imaginaire qui joue le rôle majeur. Une partie imaginaire forte tend à renforcer le forçage radiatif en surface et dans la couche atmosphérique et diminuer le forçage au sommet de l'atmosphère. Elle peut même conduire à un forçage positif au TOA. La partie réelle a un rôle moindre mais elle tend à augmenter les flux diffus que ce soit vers l'espace ou vers le sol. Les forçages en surface et dans l'atmosphère sont donc réduits. Le forçage au TOA quant à lui est augmenté, conformément aux travaux de Pilinis et al. (1995) qui avaient montré qu'une variation de +0.05 sur la partie réelle pouvait conduire à augmenter le forçage radiatif direct de 30 % au TOA.

C'est d'autre part la combinaison de toutes les plateformes instrumentales qui donne précisément accès aux ACRI permettant de réaliser la fermeture complète sur les flux mesurés en surface. On a en effet noté des écarts importants lorsque les mesures in situ sont utilisées seules. Les prélèvements in situ aéroportés peuvent en effet s'avérer problématiques surtout dans les couches possédant un mode grossier et composées de particules asphériques. Ce travail a ainsi permis de révéler l'intérêt d'utiliser la mesure lidar. Une bonne approximation des forçages peut être obtenue en utilisant les profils verticaux de coefficient d'extinction fournis par la mesure lidar et les propriétés des couches extraites des mesures photométriques AERONET sur un ensemble de cas spécifiques sélectionnés.

Un des points importants sous-jacent à cette étude radiative concerne la prise en compte des propriétés optiques des aérosols dans les modèles. Le Chapitre 5 avait révélé l'impact significatif de l'état de mélange des particules sur les ACRI. Etant donné que la partie imaginaire de l'ACRI, et par conséquent l'albédo de simple diffusion de l'aérosol, sont plus élevés en mélange interne qu'en mélange externe, le forçage radiatif au TOA (en surface) est diminué (augmenté) en valeur absolue à cause de l'absorption du rayonnement dans la couche atmosphérique d'aérosols en mélange interne. Ceci met clairement en évidence que l'effet refroidissant des aérosols sur le climat terrestre peut être fortement influencé (i.e. par augmentation ou diminution) par la manière dont le BC est mélangé avec les autres particules issues de feux de biomasse. Comme l'effet d'absorption des particules de suie est moindre dans le cas d'un mélange externe, le taux d'échauffement radiatif peut être diminué et l'effet semi-direct, qui lui est sensible, peut s'en trouver affecté. Le type de mélange se révèle donc être une propriété cruciale de l'aérosol qui mérite d'être modélisé de manière plus précise, et sur laquelle je travaille actuellement.

## Chapitre 7

---

# 7 Conclusions générales

## 7.1 Synthèse

---

Une meilleure compréhension des problématiques scientifiques et sociétales associées à la qualité de l'air et à l'évolution du climat de notre planète passe par la caractérisation précise des propriétés des aérosols atmosphériques et plus particulièrement de leur composante anthropique. Les travaux menés durant cette thèse ont participé à l'amélioration de notre compréhension de l'évolution des propriétés physico-chimiques et optiques des aérosols, en particulier de leur indice complexe de réfraction (ACRI) et de leur albédo de simple diffusion ( $\omega_0$ ). La restitution précise de ces paramètres est complexe en raison de la grande variabilité des compositions des masses d'air, de l'impact des processus de vieillissement de l'aérosol et des phénomènes dynamiques (coagulation, sédimentation...). La mesure lidar constitue un apport incontournable pour évaluer la variabilité horizontale et surtout verticale de ces propriétés microphysiques et optiques dans la CLA, mais aussi dans la couche résiduelle, ou dans les couches injectées depuis la CLA dans la troposphère libre. Nous avons ainsi souligné que c'est bien la complémentarité entre les plateformes de mesures in situ au sol ou aéroportées et les observations de télédétection active et passive qui permet de caractériser complètement l'aérosol de pollution urbaine, l'aérosol désertique ou l'aérosol issu de la combustion de biomasse.

C'est grâce à ce type de synergie instrumentale qu'une méthodologie d'analyse originale a été mise en place lors de mon travail de thèse pour la restitution de l'ACRI, dans la basse et moyenne troposphère, de façon résolue dans la colonne d'atmosphère. Cette approche a révélé une décorrélation des signatures optiques entre ce qui est observé en surface et ce qui se passe au-dessus. Appliquée dans le cadre des campagnes des programmes scientifiques ESQUIF et LISAIR, elle a également mis en évidence l'importance de la provenance géographique et de l'histoire des masses d'air qui arrivent en région parisienne dans l'évolution des propriétés des aérosols. L'étude a montré que l'albédo de simple diffusion, pour sa faible sensibilité à la partie réelle de l'ACRI et à la granulométrie, n'était pas nécessairement un très bon indicateur pour caractériser l'aérosol. En revanche, l'indice de réfraction permet de discuter le vieillissement et l'hygroscopicité de l'aérosol en raison de leur influence sur sa capacité de diffusion de la lumière solaire, pouvant indiquer la présence additionnelle de sels ou d'eau à sa périphérie. L'état de mélange des particules joue aussi un rôle considérable sur les propriétés de diffusion et d'absorption du rayonnement par les aérosols, donc sur l'ACRI. Les parties imaginaires apparaissant en particulier plus faibles quand est supposé un mélange externe, l'influence du carbone suie est alors très atténuée puisque les particules de suie très petites n'ont que peu d'impact sur les propriétés optiques de la population totale des aérosols.

Ces travaux pionniers m'ont permis de conduire une étude précise sur l'impact radiatif des aérosols désertiques et de feux de biomasse dans le cadre du programme international AMMA. En effet, j'ai montré que la connaissance précise des propriétés optiques et

microphysiques dans chacune des couches d'aérosols est indispensable pour le calcul des flux radiatifs et des taux d'échauffement dans la colonne atmosphérique. L'impact radiatif combiné des aérosols d'origine désertique et des aérosols issus des feux de biomasse observés au dessus du Niger, dans la région de Niamey, a ainsi été évalué lors de la saison sèche. Dans la couche d'aérosols de feux de biomasse, c'est la partie imaginaire qui joue le rôle majeur. Une partie imaginaire forte tend à renforcer le forçage radiatif en surface et dans la couche atmosphérique et diminuer le forçage au sommet de l'atmosphère. La partie réelle a un rôle moindre mais elle tend à augmenter les flux diffus que ce soit vers l'espace ou vers le sol. La localisation des couches les unes par rapport aux autres et les ACRI associés contrôlent par conséquent les taux d'échauffement radiatif et peuvent affecter l'effet semi-direct des aérosols sur le bilan radiatif du système Terre-Atmosphère. Ces résultats suggèrent l'importance d'une meilleure prise en compte, dans les outils de modélisation, de ces propriétés cruciales des aérosols dans chacune des couches.

## 7.2 Perspectives

---

### 7.2.1 Intérêt du lidar multi-longueurs d'onde

**Une voie de recherche et développement pour les années à venir serait de disposer d'un système lidar permettant de remonter à la granulométrie des aérosols de manière résolue dans la couche limite et la basse troposphère libre.** La méthodologie mise en place pour la détermination de l'ACRI, qui constitue la base de l'étude de synergie, nécessite une bonne connaissance des profils verticaux de coefficient d'extinction particulaire mesuré issu des signaux lidar et de BER. Il n'est pas toujours aisé, en pratique, d'accéder au profil de BER qui est indispensable pour restituer les profils verticaux de la partie imaginaire de l'ACRI. Néanmoins, nous avons vu différentes approches expérimentales qui permettent de retrouver ce paramètre. A contrario, il est plus délicat de disposer d'une granulométrie précise pour les aérosols. Celle-ci est un paramètre clé pour la détermination du forçage radiatif associé. Principalement pour les aérosols désertiques, nous avons montré, suite à des études de fermeture optique, qu'il est difficile de disposer d'une granulométrie résolue dans la colonne d'air cohérente avec les autres types de mesure. Une des solutions alternatives serait d'utiliser un lidar multi-longueurs d'onde incluant des canaux Raman (Müller et al., 1999 ; 2002). La connaissance des profils de coefficients d'extinction et de rétrodiffusion aux différentes longueurs d'onde dans le domaine UV-Visible permet d'accéder à la distribution en taille et donc à l'ACRI. On peut alors imaginer pouvoir obtenir, à partir des seules mesures du lidar, l'ensemble des paramètres microphysiques et optiques (coefficient d'extinction, albédo de simple diffusion, paramètre d'asymétrie, coefficient d'Angström) de l'aérosol permettant d'évaluer le forçage radiatif additionnel causé par les particules ou de prévoir un impact de ces dernières sur les flux contrôlant la photodissociation de certaines molécules.

### 7.2.2 Amélioration de la connaissance de l'impact des feux de forêt sur la dynamique et le climat

**Les synergies instrumentales couplant la mesure lidar à la mesure in situ doivent permettre de caractériser les aérosols de feux de biomasse dont l'impact sociétal se fait de plus en plus ressentir sur la région méditerranéenne.** Les travaux réalisés dans cette

thèse peuvent être intégrés dans des études plus vastes de la communauté scientifique pour répondre à des préoccupations sociétales actuelles. En particulier, les impacts des feux sur le bilan radiatif et la dynamique de l'atmosphère restent des questions ouvertes. Le changement climatique est responsable d'une augmentation significative des feux de forêt et de leurs intensités. Une meilleure connaissance des flux d'énergie, de quantité de mouvement et de matière induits par les feux eux-mêmes et les modes de transport des panaches permettra d'évaluer leur impact environnemental et les rétroactions induites. De tels travaux de recherche peuvent s'inscrire dans le cadre du projet d'étude des interactions entre les cycles de l'eau, des aérosols et du carbone dans le contexte programmatique émergeant d'un projet national centré sur la « Méditerranée occidentale » à l'horizon 2010-2012. Ils découlent de l'action intégrée ChArMEx (Chemistry-Aerosols Mediterranean Experiment) pour quantifier les bilans et les impacts en Méditerranée des espèces troposphériques à vie courte actives chimiquement et radiativement. Des études de processus *in situ* et par télédétection de panaches ou masses d'air chargées en espèces traces (événements intenses de feux, poussières désertiques, pics d'ozone, ...) sont envisagées en situations peu nuageuses. La connaissance de la distribution verticale des composants des cycles de l'eau, du carbone, et des aérosols (notamment la hauteur d'injection et les concentrations injectées) est encore trop parcellaire pour permettre des progrès dans la compréhension de la manière dont l'injection massive d'aérosols et de CO<sub>2</sub> liée aux feux de forêt affecte le bilan radiatif terrestre à méso-échelle et à grande échelle. Par ailleurs, les feux rencontrés sur le pourtour méditerranéen en été ont une signature plus difficilement détectable depuis l'espace à cause de leur taille et de leur nature transitoire. Dans ce cadre, la télédétection laser doit permettre de contribuer à une meilleure connaissance du bilan, des hauteurs d'injections et des schémas de transport préférentiel des aérosols et des composants majeurs du cycle du carbone (CO<sub>2</sub>, CO et CH<sub>4</sub>) associés aux feux de forêt en région méditerranéenne.

### 7.2.3 Extension à plus grande échelle

Il est nécessaire d'**étendre la caractérisation des particules à plus grande échelle**. Depuis peu, la communauté scientifique internationale dispose d'observations lidar en continu à l'échelle globale. Ces observations issues de la mission CALIPSO permettent d'envisager des études sur l'évolution saisonnière des particules à travers le monde. Le lidar CALIOP de la mission CALIPSO permet en effet de détecter les aérosols de la basse et moyenne troposphère. Il doit donc permettre une observation récurrente de la pollution particulaire tout au long de l'année. Les travaux réalisés dans l'équipe pour valider les produits aérosols et nuages issus du lidar CALIOP ont été menés par l'analyse de mesures coïncidentes avec un lidar de la Seoul National University (Kim et al., 2008). Les résultats sont très satisfaisants et montrent la qualité des produits CALIPSO (Sect. 3.3.9.5) où la structure des couches est restituée à mieux que 100 m près. En conditions de ciel clair, les profils d'extinction en aérosol sont comparables à environ  $2 \cdot 10^{-2} \text{ km}^{-1}$  près. Ces résultats permettent d'envisager un couplage entre les données CALIOP, les mesures photométriques du réseau international AERONET et si possible des observations lidar à partir du sol afin de caractériser les aérosols atmosphériques en termes de répartition verticale, de propriétés optiques et microphysiques (i.e. restitution des profils d'extinction, d'indice de réfraction, de BER, de granulométrie par couche d'aérosols, etc.). Il serait judicieux de mettre en place ce type d'étude au-dessus des mégalo-poles, dont le rôle démographique, sociétal et sanitaire ne cesse de s'accroître. Il s'agit de mieux caractériser la répartition verticale des polluants aux abords des grandes villes et des grands centres industriels afin d'évaluer la dispersion des panaches et leurs contributions au dérèglement du climat régional. Chaque centre urbain a ses propres sources de particules qui

vont différer quant à leur impact environnemental et sociétal en fonction de leurs concentrations et de leur nature. Certains d'entre eux ont une activité industrielle soutenue au sein même de la ville. Les carburants sont aussi de nature différente en fonction de l'économie de chaque pays, influençant la proportion de particules de suie absorbantes. En plus du couplage des mesures lidar (sol et CALIOP) à celles du photomètre de la station AERONET par des méthodes classiques (Chazette et al., 2003) ou plus complexes (Cuesta, 2006), différentes approches de synergie entre lidars pourraient être approfondies de manière à limiter les ambiguïtés associées à la mauvaise connaissance du BER. On peut alors penser aux méthodologies algorithmiques deux flux (Kunz, 1987) ou aux techniques de mesures couplées entre une voie lidar en diffusion élastique et une voie lidar Raman azote.

De telles observations pourront être poursuivies grâce à la future mission européenne Atmospheric Dynamics Mission (ADM-AEOLUS) qui sera lancée fin 2009 ([www.esa.int/esaLP/LPadmaeolus.html](http://www.esa.int/esaLP/LPadmaeolus.html)). Des études préparatoires ont déjà démontré tout l'intérêt de ce lidar dédié à la mesure du vent pour le suivi des aérosols troposphériques (Flamant et al., sous presse). A plus long terme, la mission EarthCare (Earth Cloud-Aerosol-Radiation Explorer) embarquant le lidar ATLID est tout à fait prometteuse.

### 7.2.4 Caractérisation des aérosols dans l'infrarouge

**Le couplage des observations lidar et IASI permettra une amélioration significative des inversions IASI et une meilleure caractérisation optique des couches d'aérosol atmosphériques dans l'IR.** Il est bien connu que l'aérosol contribue majoritairement au forçage radiatif dans le domaine UV-VIS via ses interactions avec le flux solaire. Une bonne évaluation de l'impact radiatif visible de l'aérosol atmosphérique a pu être conduite dans cette thèse en supposant que l'indice de réfraction est constant pour chaque type d'aérosol entre 0.3 et 0.8  $\mu\text{m}$ . Cela est conforme avec les mesures de Volz (1973) sauf pour les sels de mer. Pourtant, le forçage radiatif dans l'IR peut ne peut être négligeable, particulièrement la nuit en absence de flux solaire. Dans le spectre IR, l'hypothèse d'un ACRI constant n'est pas réaliste. La grande variabilité spectrale de l'ACRI, associée à la pauvreté de données dans l'IR thermique, en fait l'une des principales causes d'incertitude dans le calcul des flux radiatifs en présence d'aérosols. Pour certaines bandes spectrales, des écarts importants de la partie imaginaire de l'ACRI sont constatés en fonction de différentes minéralogies. Afin d'améliorer la caractérisation de l'aérosol dans le domaine IR, on peut imaginer avoir recours à un instrument permettant d'effectuer des mesures à grande échelle sur un vaste domaine spectral avec une bonne résolution spectrale. L'interféromètre à Transformée de Fourier IASI répond à ces deux critères. Il fonctionne de l'IR moyen (3.6  $\mu\text{m}$ ) à l'IR thermique (16  $\mu\text{m}$ ) avec une très haute résolution spectrale. Il est embarqué sur une plateforme METOP et sa continuité sera assurée par 2 nouvelles plateformes dans les années à venir. Il s'agit néanmoins de mesures passives intégrant donc toute la colonne atmosphérique et IASI possède une faible résolution spatiale sur la ligne de visée. On envisage dès lors de combiner les observations passive et active via des synergies de mesures IASI spatial-lidar sol, IASI-lidar sous ballon ou à partir de l'espace, grâce aux missions CALIPSO et METOP, afin d'obtenir de meilleures performances en terme d'évaluation des propriétés optiques des aérosols. Une connaissance précise des distributions verticales des éléments constitutifs de l'atmosphère, comme celle obtenue par des signaux lidar, peut apporter un complément indispensable à une exploitation rigoureuse du rayonnement émis par le système Terre-atmosphère vers l'espace. Deux principaux objectifs se dessinent. D'une part, la connaissance des informations de structure comme l'altitude du sommet de la couche limite et l'altitude des structures nuageuses déduites



de la mesure lidar doit permettre d'aboutir à une précision accrue des algorithmes opérationnels pour la restitution des concentrations de CO et d'O<sub>3</sub> dans la couche limite atmosphérique (CLA). On peut chercher d'autre part à utiliser les radiances IASI pour fournir des connaissances inédites sur l'indice de réfraction des aérosols de la basse et moyenne troposphère dans l'IR. A plus grande échelle, il est alors possible de traiter des situations où le phasage des plateformes CALIPSO et IASI est possible. Cela est envisageable en particulier dans le cas des poussières désertiques pour lesquelles le signal CALIOP est de bonne qualité et où il est possible de supposer les panaches homogènes sur plusieurs heures.

## Bibliographie

- Ackerman, F., Chung, H., Radiative effects of airborne dust and regional energy budget at the top of the atmosphere. *Journal of Applied Meteorology* 31, 223-233, 1992
- Ackermann, I. J., Hass, H., Memmesheimer, M., Ebel, A., Binkowski, F. S., and Shankar U.: Modal aerosol dynamics model for Europe : Development and first applications. *Atmos. Environ.* 32, 2981-2999, 1998.
- Ackerman, S., Toon, O. B., Stevens, D. E., Heymsfeld, A. J., Ramanathan, V., and Welton, E. J.: Reduction of tropical cloudiness, *Science*, 288, 1042-1047, 2000.
- Ackerman, T.P., Toon, O.B., Absorption of visible radiation in atmosphere containing mixtures of absorbing and non absorbing particles. *Applied Optics* 20, 3661-3667, 1981.
- Aitchison J., and Brown, J.A.: *The lognormal distribution function*, Cambridge University Press, Cambridge, 1957.
- Albrecht, B. A.: Aerosols, cloud microphysics, and fractional cloudiness. *Science*, 245, 1227-1230, 1989.
- Alfaro, S.C., Gomes, L., Gaudichet, A., Rajot, J.-L., Léon, J.-F., Cachier, H., Chazette, P., Dulac, F., Sarode, S.C., Inamdar, S.R., and Kadadevarmath, J.S. : Aerosol model derived from measurements performed at an Indian coastal site during the intensive field phase: size distribution and composition, *J. Geophys. Res.*, 2002.
- Alpert, P., Kaufman, Y. J., Shay-El, Y., Tanré, D., Da Silva, A., Schubert, S., and Joseph, J. H.: Quantification of dust-forced heating of the lower troposphere, *Nature*, 395, 367– 370, 1998.
- Anderson, B.E., Grant, W.B., Gregory, G.L., Browell, E.V., Collins, J.E., Sachse, G.W., Bagwell, D.R., Hudgins, C.H., Blake, D.R., Blake, N.J.: Aerosols from biomass burning over the tropical South Atlantic region: distributions and impacts, *J. Geophys. Res. (D)*, 101, 24117-24137, 1996.
- Anderson, T. L. and Ogren, J. A.: Determining aerosol radiative properties using the TSI 3563 integrating nephelometer, *Aerosol Sci. Technol.*, 29, 57-69, 1998.
- Anderson, T. L., Masonis, S. J., Covert, D. S., Charlson, R. J., Rood, M. J.: In situ measurement of the aerosol extinction-to-backscatter lidar ratio at a polluted continental site, *J. Geophys. Res.* 105(D22), 26907, doi:10.1029/2000JD900400, 2000.
- André, J.M.: *Etude expérimentale de l'indicatrice de diffusion des particules sphériques*, Thèse de doctorat de l'Université Blaise Pascal, 2000.
- Andreae, M.O.: Climate effects of changing atmospheric aerosol levels, in *World Survey of Climatology*, 20, Future climate of the world, Ed. A. Henderson-Sellers, 1994.
- Andreae, M. O., and Merlet, P.: Emission of trace gases and aerosols from biomass burning, *Global Biogeochem. Cycles*, 15(4), 955–966, 2001
- Andreae, M.O., Rosenfeld, D., Artaxo, P., Costa, A.A., Frank, G.P., Longo, K.M., Silva-Dias, M.A.F.: Smoking Clouds over the Amazon, *Science*, 303, 5662, 1337-1342, DOI: 10.1126/science.1092779, 2004.
- Angström, A., The parameters of atmospheric turbidity. *Tellus* 16, 64-75, 1964.
- Ansmann, A., Riebesell, M., Weitkamp, C.: Measurement of atmospheric aerosol extinction profiles with a Raman lidar , *J. Optics Letters*, 1990.
- Arking, A.: The radiative effects of clouds ad theirs impacts on climate, *Bull. Am. Meteorol. Soc.*, 71, 795-813, 1991.
- Asano, S., and Yamamoto, G.: Light scattering by a spheroidal particle, *Appl. Opt.*, 14, 29-49, 1975.

## Bibliographie

- Bais, A. F., Madronich, S., Crawford, J., et al.: International Photolysis Frequency Measurement and Model Intercomparison (IPMMI): Spectral actinic solar flux measurements and modeling, *J. Geophys. Res.*, 106(D16), 8543, doi:10.1029/2002JD002891, 2003
- Baumgardner, D., and Huebert, B.: The airborne aerosol inlet workshop: Meeting report, *J. Aerosol Sci.*, 24(6), 835-846, 1993.
- Baumgardner, D.G., Raga, G.B., Kok, G., Ogren, J., Rosas, I., Baez, A., Novakov, T., On the evolution of aerosols properties at a mountain site above Mexico City. *J. Geophys. Res.* 105, 22243–22253, 2000.
- Bergin, M.H., Cass, G.R., Xu, J., Fang, C., Zeng, L.M., Yu, T., Salmon, L.G., Kiang, C.S., Tang, X.Y., Zhang, Y.H., Chameides, W.L., Aerosol radiative, physical, and properties in Beijing during June, 1999. *J. Geophys. Res.* 106, 17969– 17980, 2001.
- Bergstrom, R. W., Pilewskie, P., Schmid, B., and Russell, P. B.: Estimates of the spectral aerosol single scattering albedo and aerosol radiative effects during SAFARI 2000, *J. Geophys. Res.*, 108(D13), 8474, doi:10.1029/2002JD002435, 2003.
- Berner, A.S., Sidla, Z., Galambos, C., Kruisz, C., and Hitzenberger, R.: Modal character of atmospheric black carbon size distributions, *J. Geophys. Res.*, 101, 19559-19565, 1996.
- Berthier, S., Chazette, P., Couvert, P., Pelon, J., Dulac, F., Thieuleux, F., Moulin, C., and Pain, T.: Desert dust aerosol columnar properties over ocean and continental Africa from Lidar in-Space Technology Experiment (LITE) and Meteosat synergy, *J. Geophys. Res.*, 111(D21202), doi:10.1029/2005JD006999, 2006.
- Bissonnette, L. R., Sensitivity analysis of lidar inversion algorithms. *Appl. Opt.*, 25, 2122–2125, 1986.
- Bodhaine, B.A., Ahlquist, N.C., Schnell, R.C., Threewavelength nephelometer suitable for aircraft measurements of background aerosol scattering coefficient. *Atmospheric Environment* 10, 2268–2276, 1991.
- Bodhaine, B. A., Aerosol absorption measurements at Barrow, Mauna Loa and the South Pole, *J. Geophys. Res.*, 100, 8967–8975, 1995.
- Bohren, C. F., and Huffman, D. R.: *Absorption and Scattering of Light by Small Particles*. Wiley, New York, 530pp, 1983.
- Bond, T. C., Charleson, R. J., and Heitzenberg, J.: Quantifying the emission of light-absorbing particles: Measurements tailored to climate studies, *Geophys. Res. Lett.*, 25, 337–340, 1998.
- Bond, T.C., Anderson, T.L., Campbell, D.: Calibration and intercomparison of filter-based measurements of visible light absorption by aerosols, *Aerosol Science and Technology*, 30, 582-600, 1999.
- Bond, T. C., Streets, D. G., Yarber, K. F., Nelson, S. M., Woo, J.-H., and Klimont, Z.: A technology based global inventory of black and organic carbon emissions from combustion, *J. Geophys. Res.*, 109, D14203, doi:10.1029/2003JD003697, 2004.
- Bond, T. C. and Bergstrom, R. W.: Light absorption by carbonaceous particles: An investigative review, *Aerosol Sci. and Technol.* 40: 27-67., 2006.
- Boucher, O., and Anderson, T.L.: General circulation model assessment of the sensitivity of direct climate forcing by anthropogenic sulfate aerosols to aerosol size and chemistry, *J. Geophys. Res.*, 100(D12), 26 117–26 134, 1995.
- Boucher, O, Schwartz, S.E., Ackermann, T.P., et al.: Intercomparison of models representing direct shortwave radiative forcing by sulfate aerosols, *J Geophys Res*, 103, 16979–98, 1998
- Braslau N. and Dave J. V.: Effects of aerosol on the transfer of solar energy through realistic model atmospheres, *J. appl. Met.* 12, 601-615, 1973.
- Bréon, F.-M., Tanré, D., and Generoso, S.: Aerosol effect on cloud droplet size monitored from satellite, *Science*, 295, 834-838, 2002.
- Cachier, H., Aulagnier, F., Sarda, R., et al., Aerosol studies during the ESCOMPTE experiment: An overview, *Atmos. Res.*, 74, 547–563, 2005.

## Bibliographie

- Carlson, T. N., and R. S. Caverly, Radiative characteristics of Saharan dust at solar wavelengths. *J. Geophys. Res.*, 82, 3141–3152, 1977.
- Carlson, T. N. and Benjamin, S. G.: Radiative heating rates for Saharan dust. *J. Atmos. Sci.*, 37, 193–213, 1980.
- Carrico, C. M., Rood, M. J., Ogren, J. A.: Aerosol light scattering properties at Cape Grim, Tasmania, during the First Aerosol Characterization Experiment (ACE 1). *J. Geophys. Res.* 103 (D13), 16,565-16,574, 1998.
- Carrico, C.M., Rood, M.J., Ogren, J.A., Neusüss, C., Wiedensohler, A., and Heintzenberg, J.: Aerosol optical properties at sagres, Portugal during ACE-2, *Tellus*, 52b, 694-715, 2000.
- Carrico, C. M., Kus, P., Rood, M. J., Quinn, P. K., and Bates, T. S.: Mixtures of pollution, dust, sea salt, and volcanic aerosol during ACE-Asia: radiative properties as a function of relative humidity, *J. Geophys. Res.*, 108(D23), 8650, doi:10.1029/2003JD003405, 2003.
- Cattrall, C., Reagan, J. R., Thome, K., and Dubovik, O.: Variability of aerosol and spectral lidar and backscatter and extinction ratios of key aerosol types derived from selected Aerosol Robotic Network locations, *J. Geophys. Res.*, 110(D10S11), doi:10.1029/2004JD005124, 2005.
- Chandrasekhar, S.: Radiative transfert, pp. 393, Dover Publications Inc., New-York, 1960.
- Charlson R. J. and Pilat M. J.: Climate: the influence of aerosols, *J. appl. Met.* 8 1001-1002, 1969.
- Charlson, R.J., Lovelock, J.E., Andreae, M.O., and Warren, S.G.: Oceanic phytoplankton, atmospheric sulphur, cloud albedo and climate, *Nature*, 326, 655-661, 1987.
- Charlson, R.J., Langner, J., and Rodhe, H.: Sulphate aerosol and climate, *Nature*, 348, 22, 1990.
- Charlson, R. J., Langner, J., Rodhe, H., Leovy, C. B., Warren, S. G.: Perturbation of the northern hemisphere radiative balance by backscattering from anthropogenic sulfate aerosols. *Tellus* 43B, 152-163, 1991.
- Charlson, R.J., Schwartz, S.E., Hales, J.M., Cess, R.D., Coakley, Jr., J.A., Hansen, J.E., and Hoffman, D.J.: Climate forcing by anthropogenic aerosols, *Science*, 255, 423–430, 1992.
- Chazette, P. : Etude complémentaire des systèmes de télédétection laser et sondeurs passifs pour la détermination des paramètres météorologiques à partir des plateformes spatiales, Thèse de doctorat de l'Université Paris 7, 1990.
- Chazette, P., David, C., Lefrère, J., Godin, S., Pelon, J., Mégie, G., Comparative lidar study of the optical, geometrical, and dynamical properties of stratospheric postvolcanic aerosols, following the eruption of El Chichon and Mount Pinatubo. *Journal of Geophysical Research* 100 (D11), 23195–23207, 1995.
- Chazette, P. and Liousse, C.: A case study of optical and chemical apportionment for urban aerosols in Thessaloniki, *Atmos. Environ.*, 35, 2497–2506, 2001.
- Chazette, P., Pelon, J., and Mégie, G. : Determination by spaceborne backscatter lidar of the structural parameters of atmospheric scattering layer, *Appl. Opt.*, 40, 3428-3440, 2001.
- Chazette, P., Randriamiarisoa, H., Sanak, J., Flamant, C., Pelon, J., Airborne lidar for the survey of the Paris aerosol production in the frame of ESQUIF program. In: Bissonnette, L.R., Royet, G., Vallée, G. (Eds.), *Lidar Remote Sensing in Atmospheric and Earth Sciences*, vol. 1. Defence R&D Canada Valcartier, Val-Bélair, Canada, pp. 173–175, 2002a.
- Chazette, P. : Etude de l'aérosol atmosphérique : Une approche multi-instrumentée de l'observation au sol à l'observation depuis l'espace, HDR, 2002b.
- Chazette, P.: The monsoon aerosol extinction properties at Goa during INDOEX as measured with lidar, *J. Geophys. Res.*, 108(D6), 4187, doi:10.1029/2002JD002074, 2003.
- Chazette P., Couvert P., Randriamiarisoa H., Sanak J., Bonsang B., Moral P., Berthier S., Salanave S., Toussaint F. Three-dimensional survey of pollution during winter in French Alps valleys. *Atmosph. Environ.* 39, 1035-1047, 2005a.

## Bibliographie

- Chazette, P., Randriamiarisoa, H., Sanak, J., Couvert, P., and Flamant, C.: Optical properties of urban aerosol from airborne and ground based in situ measurements performed during the ESQUIF program, *J. Geophys. Res.*, 110, D02206, doi:10.1029/2004JD004810, 2005b.
- Chazette, P., Sanak, J., and Dulac, F.: New Approach for Aerosol Profiling with a Lidar Onboard an Ultralight Aircraft: Application to the African Monsoon Multidisciplinary Analysis, *Environ. Sci. Technol.*, 41, 8335–8341, 2007a.
- Chazette, P. : La surveillance de la pollution de l'air par les particules, Paris sous l'œil des chercheurs, Ed Belin, Mairie de Paris, pp 171-182, 2007b.
- Chazette, P., Gros, V., Pham, M., Raut, J.-C., Bonsang, B., Sanak, J., Tombette, M. and Cuesta, J.: Lidar, a tool to constrain the traffic emissions: application to LISAIR program, 24th International Laser Radar Conference (ILRC), Boulder, USA, 23-27, June, 2008.
- Chen, Y., Kreidenweis, S. M., McInnes, L. M., Rogers, D. C., and DeMott, P. J.: Single particle analyses of ice nucleating aerosols in the upper troposphere and lower stratosphere. *Geophys. Res. Lett.*, 25, 1391-1394, 1998.
- Chiapello, I., Bergametti, G., Chatenet, B., Dulac, F., Jankowiak, I., Liousse, C., and Santos Soares, E.: Contribution of the different aerosol species to the aerosol mass load and optical depth over the northeastern tropical Atlantic, *J. Geophys. Res.*, 104, 4025-4035, 1999.
- Chýlek, P., Srivastava, V., Pinnick, R. G. and Wang, R. T.: Scattering of electromagnetic waves by composite spherical particles: Experiment and effective medium approximations, *Appl. Opt.* 27(12): 2396-2404, 1988.
- Chýlek, P., Videen, G., Geldart, W., Dobbie, S. and Tso, W.: Effective medium approximation for heterogeneous particles. *Light Scattering by Nonspherical Particles: Theory, Measurements and Geophyscial applications*. M. Mishchenko, Academic, San Diego, Calif: 273-308, 2000.
- Claquin, T.: Modélisation de la minéralogie et du forçage radiatif des poussières désertiques, Thèse de l'Université Paris 6, Paris, 1999.
- Clarke, A.D., Uehara, T., and Porter, J.N.: Atmospheric nuclei and related aerosol fields over the Atlantic: Clean subsiding air and continental pollution during ASTEX, *J. Geophys. Res.*, 102, 25281-25292, 1997.
- Clarke, A. D., Shinozuka, Y., Kapustin, V. N., Howell, S., Huebert, B., Doberty, S., Anderson, T., Covert, D., Anderson, J., Hua, X., II, K. G. M., McNaughton, C., Carmichael, G., Weber, R.: Size distributions and mixtures of dust and black carbon aerosol in Asian outflow: Physiochemistry and optical properties. *J. Geophys. Res.* 109 (D15S09), 2004.
- Coakley, J.A.J., Bernstein, R.L., and Durkee, P.A.: Effect of ship-track effluents on cloud reflectivity, *Science*, 237, 1020-1022, 1987.
- Collis, R. T.: Lidar. *Advances in Geophysics* 13, 113–139, 1969.
- Covert, D. S., Charlson, R. J., and Ahlquist, N. C.: A study of the relationship of chemical composition and humidity to light scattering by aerosols, *J. Appl. Meteorol.*, 11, 968–976, 1972.
- Covert, D. S., and Heintzenberg, J.: Measurements of the degree of internal/external mixing of hygroscopic compounds and soot in atmospheric aerosols, *Sci. Total Environ.*, 36, 347–352, 1984.
- Covert, D. S., Heintzenberg, J. and Hansson, H. C.: Electro-optical detection of external mixtures in aerosols, *Aerosol Sci. and Technol.* 12: 446-456, 1990.
- Cox, S.J., Wang, W.C. and Schwartz, S.E.: Climate response to radiative forcing by sulfate aerosols and greenhouse gases, *Geophys. Res. Lett.*, 22, 2509-2512, 1995.
- Cros, B., Durand, P., Cachier, H., et al.: An overview of the ESCOMPTE campaign, *Atmos. Res.*, 69, 3–4, 241–279, 2004.
- Cuesta, J. : Caractérisation des aérosols atmosphériques en Ile de France : contribution locale et transport à longues distances, Thèse de doctorat de l'Ecole Polytechnique, 2006.

## Bibliographie

- D'Alessio, A., Lorenzo, A., Sarofim, A., Beretta, F., Masi, F. and Venitozzi, C.: Proceedings of 15<sup>th</sup> Symp. (Intl.) on Combust., Pittsburg, 1975.
- D'Almeida, G.A., and Schütz, L.: Number, mass and volume distributions of mineral aerosol and soils of the Sahara, *J. Climate Appl. Meteor.*, 22, 233-243, 1983.
- D'Almeida, G. A., On the variability of desert aerosol radiative characteristics, *J. Geophys. Res.*, 92, 3017– 3026, 1987.
- D'Almeida, G. A., Koepke, P., and Shettle, E. P.: *Atmospheric Aerosols – Global Climatology and Radiative Characteristics*, edited by: Deepak, A., Hampton, VA, USA, pp 561, 1991.
- Dalzell, W. H. and Sarofim, A. F.: Optical constants of soot and their application to heat-flux calculations, *J. Heat Transfer* 91: 100-104, 1969.
- De Haan, J. F., Bosma, P. B. and Hovenier, J. W.: The adding method for multiple scattering calculations of polarized light. *Astron. Astrophys.*, 183, 371-391, 1986.
- Deirmendjian, D. : *Electromagnetic scattering on spherical polydispersions*, America Elsevier, Pub, New-York, 1969.
- De Leeuw, G., Kunz, G.J., and Lamberts, C.W.: Humidity effects on the backscattering/extinction ratio, *Appl. Opt.*, 25(22), 3971-3973, 1986.
- Delmas, R., Mégie, G., Peuch, V.H., Ancellet, G., Aumont, B., Beau, I., Boucher, O., Hauglustaine, D., Laj, P., Lefèvre, F., et al. : *Physique et chimie de l'atmosphère*. Editions Belin (collection échelles), 2005.
- Dentener, F.J., Carmichael, J.R., Zhang, Y., Lelieveld, J., and Crutzen, P.J.: Role of mineral aerosol as a reactive surface in the global troposphere, *J. Geophys. Res.*, 101, 22869-22889, 1996.
- Deuzé, J.L., Herman, M., and Santer, R.: Fourier series expansion of the transfert equation in the atmosphere-ocean system, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 41, 483-494, 1989.
- Dickerson, R.R., Kondragunta, S., Stenchikov, G., Civerolo, K.L., Doddridge, B.G., and Holben, B.N.: The impact of aerosols on solar ultraviolet radiation and photochemical smog, *Science*, 278, 827-830, 1997.
- Donaldson, K., Li, X. Y., and MacNee, W.: Ultrafine (nanometer) particle mediated lung injury, *J. Aerosol Sci.*, 29, 553-560, 1998.
- Draine, B.T., and Goodman, J.: Beyond Clausius-Mossotti wave propagation on a polarizable point lattice and the discrete dipole approximation, *Astrophys. J.*, 405, 685-697, 1993.
- Dubovik, O., King, M.D.: A flexible inversion algorithm for retrieval of aerosol optical properties from sun and sky radiance measurement, *J. Geophys. Res.*, 2000.
- Dubovik, O., A. Smirnov, B. N. Holben, M. D. King, Y.J. Kaufman, T. F. Eck, and I. Slutsker, Accuracy assessments of aerosol optical properties retrieved from AERONET sun and sky-radiance measurements, *J. Geophys. Res.*, 105, 9791-9806, 2000.
- Dubovik, O., B. N. Holben, T. F. Eck, A. Smirnov, Y. J. Kaufman, M. D. King, D. Tanre, and I. Slutsker, Variability of absorption and optical properties of key aerosol types observed in worldwide locations, *J. Atmos. Sci.*, 59, 590–608, 2002.
- Dubovik, O., Sinyuk, A., Lapyonok, T., et al.: Application of spheroid models to account for aerosol particle nonsphericity in remote sensing of desert dust, *J. Geophys. Res.*, 111, D11208, doi:10.1029/2005JD006619, 2006
- Dulac, F.; Chazette, P.; Gomes, L.; Chatenet, B.; Berger, H.; Vinicula dos Santos, J. M.: A method for aerosol profiling in the lower troposphere with coupled scatter and meteorological rawindsondes and first data from the tropical Atlantic off Sahara. *J. Aerosol Sci.*, 32, 1069–1086, 2001
- Dulac, F., Bergametti, G., Losno, R., Remoudaki, E., Gomes, L., Ezat, U., and Buat-Ménard, P.: Dry deposition of mineral aerosol particles in the atmosphere: Significance of the large size fraction, in *Precipitation Scavenging and Atmosphere-Surface Exchange*, edited by S. E. Schwartz and W. G. N. Slinn, pp. 841-854, Hemisphere, Richland, Wash., 1992a.

## Bibliographie

- Dulac, F., Tanré, D., Bergametti, G., Buat-Ménard, P., Desbois, M., and Sutton, D.: Assessment of the African airborne dust mass over the western Mediterranean Sea using Météosat data., *J. Geophys. Res.*, 97 (D2), 2489-2506, 1992b.
- Dulac F. and Chazette, P.: Characterization of a multi-layer aerosol structure in the eastern Mediterranean observed with the airborne polarized lidar ALEX during a STAAARTE campaign (June 1997), *Atmosph. Chem. Phys.*, 3, 2393-2426, 2003.
- Dupont, E., Pelon, J., Flamant, C.: Study of the moist Convective Boundary Layer structure by backscattering lidar , *Boundary-Layer Met.*, 1994.
- Durieux, E., L. Fiorani, B. Calpini, M. Flamm, L. Jaquet, and H. Van der Bergh: Tropospheric ozone measurements over the greater Athens area during the MEDCAPHOT-TRACE campaign in Athens, Greece (20 August–20 September), *Atmos. Environ.*, 32, 2141–2150, 1998.
- Dye J. E. and D. Baumgardner, Evaluation of the forward scattering spectrometer probe: I. Electronic and optical studies, *J. Atmos. Ocean. Tech.*, 1, 329-344, 1984.
- Ebert, M., Weinbruch, S., Hoffmann, P., and Ortner, H. M.: The chemical composition and complex refractive index of rural and urban influenced aerosols determined by individual particle analysis, *Atmos. Environ.*, 38, 6531–6545, 2004.
- Eck, T. F., Holben, B. N., Ward, D. E., Mukelabai, M. M., Dubovik, O., Smirnov, A., Schafer, J. S., Hsu, N. C., Piketh, S. J., Queface, A., Le Roux, J., and Slutsker, I.: Variability of biomass burning aerosol optical characteristics in southern Africa during the SAFARI 2000 dry season campaign and a comparison of single scattering albedo estimates from radiometric measurements, *J. Geophys. Res.*, 108(D13), 8477, doi:10.1029/2002JD002321, 2003.
- Eddington, A. S.: On the radiative equilibrium of the stars. *Mon. Not. Roy. Astronom. Soc.* 77: 16-35, 1916.
- Egan, W. G. and Hilgeman, T.: Anomalous refractive index of submicron-sized particles, *Appl. Opt.* 19: 3724-3727, 1980.
- Eleftheriadis, K., D. Balis, I. Colbeck, and N. Manalis, Atmospheric aerosol and gaseous species in Athens, Greece, *Atmos. Environ.*, 32, 2183–2191, 1998.
- Enya, T., Suzuki, H., Hirayama, T. and Hisamatsu, Y.: 3-Nitrobenzanthrone, a powerful mutagen and suspected human carcinogen found in diesel exhaust and airborne particulates, *Environmental Science and technology*, 31: 2772-2276, 1997.
- Favez, O.: Caractérisation physico-chimique de la pollution particulaire dans des mégapoles contrastées, Thèse de doctorat de l'Université Paris 7, 2008.
- Faxvog, F.R., Roessler, D.M., Carbon aerosol visibility vs particle size distribution. *Applied Optics* 17, 2612-2616, 1978.
- Fernald, F.G., Herman, B.M., Reagan, J.A.: Determination of aerosol height distributions by lidar, *J. Appl. Meteorol.*, 1972.
- Fernald, F.G.: Analysis of atmospheric lidar observations - Some comments, *Appl. Opt.*, 1984.
- Ferrare, R.A., S.H. Melfi, D.N. Whiteman, M. Poellot, and Y.J. Kaufman, Raman lidar measurements of aerosol extinction and backscattering, 2. Derivations of aerosol real refractive index, single-scattering albedo, and humification factor using a Raman lidar and aircraft size distribution measurements, *J. Geophys. Res.*, 103, 19 673-19 689, 1998.
- Flamant, C. and Pelon, J.: Boundary Layer Structure over the Mediterranean during a Tramontane Event, *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.* 122, 1741-1778, 1996.
- Flamant, C., Pelon, J., Flamant, P. H., Durand, P.: Lidar determination of the entrainment zone thickness at the top of the unstable marine atmospheric boundary-layer, *Boundary-Layer Meteorol.*, 1997.
- Flamant, C., Pelon, J., Chazette, P., Trouillet, V., Quinn, P.K., Frouin, R., Bruneau, D., Leon, J. F., Bates, T.S., Johnson, J., Livingston, J. : Airborne lidar measurements of aerosol spatial

## Bibliographie

- distribution and optical properties over the Atlantic Ocean during a European pollution outbreak of ACE-2, *Tellus B*, Vol. 52, N. 2, 662-677, 2000.
- Flamant, P. H., Cuesta, J., Denneulin, M.-L., Dabas, A., Huber, D.: « ADM-Aeolus retrieval algorithms for aerosol and cloud products », *Tellus*, 60A, 273-286, 2008.
- Fouquart, Y., Bonnel, B., Brogniez, G., Buriez, J. C., Smith, L., Morcrette, J. J., and Cerf, A.: Observations of Saharan aerosols: Results of ECLATS field experiment, part II, Broadband radiative characteristics of the aerosols and vertical radiative flux divergence, *J. Clim. Appl. Meteor.*, 26, 38– 52, 1987.
- Fuller, K. A., Malm, W. C. and Kreidenweis, S. M.: Effects of mixing on extinction by carbonaceous particles, *J. Geophys. Res.* 104(D13): 15941-15954., 1999.
- Gasso, S., Hegg, D. A., Covert, D. S., Collins, D., Noone, K. J., Oström, E., Schmid, B., Russel, P. B., Livingston, J. M., Durkee, P. A., and Jossion, H.: Influence of humidity on the aerosol scattering coefficient and its effect on the upwelling radiance during ACE-2, *Tellus*, 52B, 546–567, 2000.
- Giorgi, F.: Dry deposition velocities of atmospheric aerosols as inferred by applying a particle dry deposition parametrization to a general circulation model, *Tellus*, 40B, 23-41, 1988.
- Grini, A., Tulet, P., and Gomes, L.: Dusty weather forecasts using the MesoNH mesoscale atmospheric model, *J. Geophys. Res.*, 111, D19205, doi:10.1029/2005JD007007, 2006.
- Guyon, P., Graham, B., Beck, J., Boucher, O., Gerasopoulos, E., Mayol-Bracero, O. L., Roberts, G. C., Artaxo, P., and Andreae, M. O.: Physical properties and concentration of aerosol particles over the Amazon tropical forest during background and biomass burning conditions, *Atmos. Chem. Phys.*, 3, 951–967, SRef-ID: 1680-7324/acp/2003-3-951 , 2003
- Hamonou, E., P. Chazette, D. Balis, F. Dulac, X. Schneider, E. Galani, G. Ancellet, and A. Papayannis, Characterization of the vertical structure of Saharan dust export to the Mediterranean basin, *J. Geophys. Res.*, 104, 22257– 22270, 1999.
- Hand, L. J., Kreidenweis, S. M.: A new method for retrieving particle refractive index and effective density from aerosol size distribution data. *Aerosol Sci. and Technol.* 36, 1012-1026, 2002.
- Handbook of chemistry and physics: Cleveland, OH., The Chemical Rubber Publishing Co., 1963.
- Hänel, G.: The real part of the mean complex refractive index and the mean density of samples of atmospheric aerosol particles, *Tellus*, 20, 371-379, 1968.
- Hänel, G.: The properties of atmospheric aerosol particles as functions of the Relative humidity at thermodynamic equilibrium with the surrounding moist air, *Adv. Geophys.*, 19, 73–188, 1976.
- Hänel, G.: Radiation budget of the boundary layer: Part II. Simultaneous measurement of mean solar volume absorption and extinction coefficients of particles, *Contrib. Atmos. Phys.* 60: 241- 247, 1987.
- Hansen, J.E., and Travis, L.D.: Light scattering in planetary atmospheres, *Space Sci. Rev.*, 16, 527-610, 1974.
- Hansen, A., Rosen, H. and Novakov, T.: The aethalometer: an instrument for real-time measurement of optical absorption by aerosol particles, *Science of the Total Environment* 36: 191-196, 1984.
- Hansen, A.D.A, and Novakov, T.: Real time measurements of aerosol black carbon during the carbonaceous species methods comparison study, *Aer. Sci. Technol.*, 12, 194-199, 1990.
- Hansen, A. D. A., Kapustin, V. N., Kopeikin, V. M., Gillette, D. A. and Bodhaine, B. A.: Optical absorption by aerosol black carbon and dust in a desert region of central asia, *Atmospheric Environment* 27A(16): 2527-2531, 1993.
- Hansen, J.E., Sato, M., and Ruedy, R.: Radiative forcing and climate response, *J. Geophys. Res.*, 102, 6831-6864, 1997.



## Bibliographie

- Hansen, J.E., Sato, M., Ruedy, R., Lacis, A., and Oinas, V.: Global warming in the twenty-first century: An alternative scenario, *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.*, 97, 9875-9880, 2000.
- Harshvardhan, Aerosol climate interactions, in *Aerosol-Cloud-Climate Interactions*, edited by P. V. Hobbs, pp. 75 – 95, Academic, San Diego, Calif., 1993.
- Hasan, H. and Dzubay, T. G., Apportioning light extinction coefficients to chemical species in atmospheric aerosol, *Atmos. Environ.* 17: 1573-1581, 1983.
- Hasegawa, S., and Ohta, S.: Some measurements of the mixing state of soot-containing particles at urban and non-urban sites, *Atmos. Environ.*, 36, 3899– 3908, 2002.
- Hauck, H., Berner, A., Frischer, T., Gomiscek, B., Kundi, M., Neuberger, M., Puxbaum, H., Preining, O., and Team, A.: AUPHEP-Austrian Project on Health Effects of Particulates general overview. *Atmos. Environ.* 38, 3905–3915, 2004.
- Hauglustaine, D.A., Brasseur, G.P., Walters, S., Rasch, P.J., Muller, J.-F., Emmons, L.K. and Carroll, M.A.: MOZART : A global chemical transport model for ozone and related chemical tracers, 2. Model results and evaluation, *Journal of Geophysical Research*, 103, 28291-28336, 1998.
- Haywood, J. M. and Shine, K. P.: The effect of anthropogenic sulfate and soot aerosol on the clear sky planetary radiation budget. *Geophys. Res. Lett.*, 22, 602-606, 1995.
- Haywood, J. M. and Shine, K. P.: Multi-spectral calculations of the direct radiative forcing of tropospheric sulphate and soot aerosols using a column model, *Q. J. R. Meteorol. Soc.*, 123, 1907-1930, 1997.
- Haywood, J.M., and Boucher, O.: Estimates of the direct and indirect radiative forcing due to tropospheric aerosols: A review, *Reviews of Geophysics*, 38, 4, 513-543, 2000.
- Haywood, J., Francis, P., Dubovik, O., Glew, M., and Holben, B.: Comparison of aerosol size distributions, radiative properties, and optical depths determined by aircraft observations and Sun photometers during SAFARI 2000, *J. Geophys. Res.*, 108, 8473, doi:10.1029/2002JD002250, 2003a.
- Haywood, J., Francis, P., Osborne, S., Glew, M., Loeb, N., Highwood, E., Tanré, D., Myhre, G., Formenti, P., and Hirst, E.: Radiative properties and direct radiative effect of Saharan dust measured by the C-130 aircraft during SHADE: Solar spectrum, *Journal of Geophysical Research*, vol. 108, No. D18, 8577, doi:10.1029/2002JD002687, 2003b
- Haywood, J. M., Osborne, S. R., Francis, P. N., Keil, A., Formenti, P., Andreae, M. O., and Kaye, P. H.: The mean physical and optical properties of regional haze dominated by biomass burning aerosol measured from the C-130 aircraft during SAFARI 2000, *J. Geophys. Res.*, 108, doi:10.1029/2002JD002226, 2003c.
- Haywood, J., Bharmal, N., Brooks, M. et al.: Overview of the Dust and Biomass burning Experiment and African Multidisciplinary Monsoon Analysis Special Observational Period-0, submitted, *J. Geophys. Res.*, 2008.
- Hegg, D., Covert, D.S., Rood, M.J., and Hobbs, P.V.: Measurement of aerosol optical properties in marine air, *J. Geophys. Res.*, 101, 12893-12903, 1996.
- Hegg, D. A., Covert, D. S. and Crahan, K.: The dependence of aerosol light-scattering on RH over the Pacific Ocean, *Geophys. Res. Lett.* 29(8): 1219, 2002.
- Heller, W.: Remarks on refractive index mixture rules. *J. Phys. Chem.*, 69, 1123-1129, 1965.
- Hess, M., Koepke, P., and Schult, I.: Optical properties of aerosols and clouds : The software package OPAC, *Bull. Am. Meteorol. Soc.*, 79, 831-844, 1998.
- Highwood, E., Haywood, J. M., Silverstone, M. D., Newman, S. M., and Taylor, J. P.: Radiative properties and direct effect of Saharan dust measured by the C-130 aircraft during Saharan Dust Experiment (SHADE), 2. Terrestrial spectrum, *J. Geophys. Res.*, 108, 8578, doi :10.1029/2002JD002 552, 2003.

## Bibliographie

- Higurashi, A., and T. Nakajima, Detection of aerosol types over the East China Sea near Japan from four-channel satellite data, *Geophys. Res. Lett.*, 29(17), 1836, doi:10.1029/2002GL015357, 2002.
- Hinds, W.C.: Aerosol technology, Wiley, New York, 1982.
- Hitzenberger, R., and Puxbaum, H.: Comparisons of the measured and calculated specific absorption coefficient for Vienna urban aerosol samples, *Aerosol Sci. Technol.* 18, 323–345, 1993.
- Hitzenberg, R. and Tohno, S.: Comparison of black carbon (BC) aerosols in two urban areas – concentrations and size distributions, *Atmos. Environ.*, 35, 2153–2167, 2001.
- Hobbs, P. V., Reid, J. S., Kotchenruther, R. A., Ferek, R. J., and Weiss, R.: Direct radiative forcing by smoke from biomass burning, *Science*, 275, 1776–1778, 1997.
- Hodzic, A. : Modélisation des aérosols de pollution en Ile de France, Thèse de doctorat de l'Ecole Polytechnique, 2005.
- Hodzic, A., R. Vautard, P. Chazette, L. Menut, and B. Bessagnet: Aerosol chemical and optical properties over the Paris area within ESQUIF project, *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 3257–3280, 2006.
- Höffer, A., Gelencs'er, A., Guyon, P., Kiss, G., Schmid, O., Frank, G. P., Artaxo, P., Andreae, M. O.: Optical properties of humic-like substances (HULIS) in biomass-burning aerosols. *Atmos. Chem. Phys.* 6, 3563–3570, 2006.
- Hofmann, D.J. and Solomon, S.: Ozone destruction through heterogeneous chemistry following the eruption of El Chichon, *J. Geophys. Res.*, 94, 5.029–5.041, 1989.
- Holben, B.N., Kaufman, Y.J., Setzer, A.W., TanreH , D., Ward, D.E.: Optical properties of aerosol emissions from biomass burning in the Tropics, BASE-A. In: Levine, J.S. (Ed.), *Global Biomass Burning*. MIT Press, Cambridge, MA, pp. 403–411, 1991.
- Holben, B. N., Eck, T.F., Slutsker, I., et al.: AERONET – A federated instrument network and data archive for aerosol characterisation, *Remote Sens. Environ.*, 66, 1–16, 1998.
- Horvath, H.: Atmospheric light absorption - A review, *Atmos. Environ.* 27A: 293–317, 1993.
- Horvath, H.: Influence of atmospheric aerosols upon the global radiation balance: Atmospheric particles IUPAC series on analytical and physical chemistry of environmental systems, 5, in: Harrison, R.M., Van Gieken, R. (Eds.), Wiley, New-York, 1998.
- Horvath, H., Alados Arboledas, L., Olmo, FJ, Jovanovic, O., Gangl, M., Kaller, W., Sanchez, C, Sauerzopf, H, Seidl, S. Optical characteristics of the aerosol in Spain and Austria and its effect on radiative forcing. *J Geophys Res*, 107(D19), 10.1029/2001JD001472, 2002.
- Huebert, B. J., Bates, T., Russell, P. B., Shi, G., Kim, Y. J., Kawamura, K., Carmichael, G., and Nakajima, T.: An overview of ACE-Asia: Strategies for quantifying the relationships between Asian aerosols and their climatic impacts, *J. Geophys. Res.*, 108(D23), 8633, doi:10.1029/2003JD003550, 2003.
- Hughes, H. G., Ferguson, J. A., and Stephens, D. H.: Sensitivity of a lidar inversion algorithm to parameters relating atmospheric backscatter and extinction, *Appl. Opt.*, Vol. 24, No. 11, 1609–1613 , 1985.
- Hughes, H.G., Paulson, M.R.: Double-Ended Lidar Techniques Lidar Techniques for Aerosol Studies, *Appl. Opt.* 27, 2273–2278, 1988.
- IAMAP 1986: A preliminary cloudless standard atmosphere for radiation computation., WMO, World Meteorological Organization, Boulder, CO, USA, 1986.
- Ignatov, A. M., L. L. Stowe, S. M. Sakerin, and G. K. Korotaev, Validation of the NOAA/NESDIS satellite aerosol product over the North Atlantic in 1989, *J. Geophys. Res.*, 100, 5123– 5132, 1995.
- Im, J.-S., Saxena, V. K., Wenny, B. N.: An assessment of hygroscopic growth factors for aerosols in the surface boundary layer for computing direct radiative forcing. *J. Geophys. Res.* 106 (D17), 20213–20224, 2001.

## Bibliographie

- Intergovernmental Panel on Climate Control (IPCC), Climate Change 1995, in *The Science of Climate change*, Contribution of Working Group I to the second assessment report of the Intergovernmental Panel on Climate Change, J.T. Houghton, L.G. Meira Filho, A. Callander, N. Harris, A. Kattenberg and K. Maskell, eds. Cambridge University Press, Cambridge, UK, 572, 1995.
- Intergovernmental Panel on Climate Control (IPCC), Climate Change 2001, the Third Assessment Report of the IPCC, Cambridge Univ. Press, New York, 2001.
- Intergovernmental Panel on Climate Control (IPCC): Climate Change 2007, the Fourth Assessment Report of the IPCC, Cambridge Univ. Press, New York, 2007.
- Jacob, D. J.: Heterogeneous chemistry and tropospheric ozone. *Atmos. Environ.* 34(34), 2131–2159, 2000.
- Jacobson, M.: Studying the effects of aerosols on vertical photolysis rate coefficient and temperature profiles over an urban airshed, *J. Geophys. Res.*, 103, 10593-10604, 1998.
- Jacobson, M.J.: A physically-based treatment of elemental carbon optics: implications for global direct forcing of aerosols, *Geophys. Res. Lett.*, 27 (2), 210 – 220, 2000.
- Jacobson, M. Z.: Strong radiative heating due to the mixing state of black carbon in atmospheric aerosol. *Nature* 409, 695-697, 2001.
- Jaenicke, R.: Physical and chemical properties of the air, in *Numerical data and functional relationship in science and technology*, edited by G. Fischer, pp. 391-457, Springer, Berlin, 1988.
- Japar, S. M., Brachaczek, W. W., Gorse, R. A., Norbeck, J. M. and Pierson, W. R.: The contribution of elemental carbon to the optical properties of rural atmospheric aerosols, *Atmos. Environ.* 20: 1281-1289, 1986.
- Jensen, E.J. and Toon, O.B.: The potential impact of soot from aircraft exhaust on cirrus clouds, *Geophys. Res. Lett.*, 24, 249-252, 1997.
- Johnson, D.W., Osborne, S., Wood, R., Suhre, K., Quinn, P.K., Bates, T., Andreae, M.O., Noone, K.J., Glantz, P., Bandy, B., Rudolph, J., and O'Dowd, C.: Observations of the evolution of the aerosol, cloud and boundary-layer characteristics during the 1st ACE-2 Lagrangian experiment. *Tellus*, 52B, 348–374, 2000.
- Johnson, B. T., Osborne, S. R. and Haywood, J. M.: Aircraft measurements of biomass-burning aerosols over West Africa during DABEX, submitted, *J. Geophys. Res.*, 2008a.
- Johnson, B., T., B. Heese, S. McFarlane, P. Chazette, A. Jones and N. Bellouin: Vertical distribution and radiative forcing of mineral dust and biomass-burning aerosols over West Africa during DABEX, accepted for publication, *J. Geophys. Res.*, 2008b.
- Jones, A., Roberts, D.L., and Slingo, A.: A climate model study of indirect radiative forcing by anthropogenic aerosols, *Nature*, 370, 450-453, 1994.
- Joseph, J., Wiscombe, W. and Weiman, J.: The Delta-Eddington Approximation for Radiative Flux Transfer, *Journal of Atmospheric Sciences*, 33, 2452–2459, 1976.
- Junge, C.E.: *Air chemistry and radioactivity*, Academic Press, 382 pp, 1963.
- Kambezidis, H.D., Peppes, A.A., Melas, D., An environmental experiment over Athens urban area under sea breeze conditions. *Atmospheric Research* 36, 139–156, 1995.
- Kasten, F.: Visibility in the phase of pre-condensation, *Tellus*, 21, 631-635, 1969.
- Katrinak, K.A., Rez, P., Perkes, R., and Busek, P.R.: Fractal geometry of carbonaceous aggregates from an urban aerosol, *Environ. Sci. Technol.*, 24, 539-547, 1993.
- Kaufman, Y.J. and Chou, M.D.: Model simulations of the competing climatic effects of SO<sub>2</sub> and CO<sub>2</sub>, *J. Climate*, 6, 1241-1252, 1993.
- Kaufman, Y.J., Hobbs, P.V., Kirchhoff, V.W.J.H., Artaxo, P., Remer, L.A., Holben, B.N., King, M.D., Ward, D.E., Prins, E.M., Longo, K.M., Mattos, L.F., Nobre, C.A., Spinhrne, J.D., Ji, Q., Thompson, A.M., Gleason, J.F., Christopher, S.A., and Tsay, S.-C.: Smoke, Clouds, and Radiation-Brazil (SCAR-B) experiment, *J. Geophys. Res.*, 103, D24, 31,783-31,808, 1998.

## Bibliographie

- Kaufman, Y. J., D. Tanré, O. Dubovik, A. Karnieli, and L. A. Remer, Absorption of sunlight by dust as inferred from satellite and groundbased measurements, *Geophys. Res. Lett.*, 28, 1479–1482, 2001.
- Keil, A., and Haywood, J. M.: Solar radiative forcing by biomass burning aerosol particles during SAFARI 2000: A case study based on measured aerosol and cloud properties, *J. Geophys. Res.*, 108(D13), 8467, doi:10.1029/2002JD002315, 2003.
- Kent, G.S., Yue, G.K., Farrukh, U.O., Deepak, A., Modelling atmospheric aerosol backscatter at CO<sub>2</sub> laser wavelengths. 1: Aerosol properties, modelling techniques, and associated problems. *Applied Optics* 22, 1655–1665, 1983.
- Keskinen, J., Pietarinen, K. and Lehtimäki, M., Electrical Low Pressure Impactor. *J. Aerosol Sci.*, Vol. 23, No. 4, pp.353-360, 1992.
- Key, J., Streamer User's Guide, Cooperative Institute for Meteorological Satellite Studies, University of Wisconsin, 96 pp, 2001.
- Kiehl, J.T., and Briegleb, B.P.: The relative roles of sulfate aerosols and greenhouse gases in climate forcing, *Science*, 260, 311-314, 1993.
- Kiehl, J.T., and Rodhe, H.: Modeling geographical and seasonal forcing due to aerosols, in *Aerosol Forcing of Climate*, eds. R.J. Charlson and Heintzenberg, Wiley, New York, 281-296, 1995.
- Kilsby C. G. and Smith M. H., Comparison of the physical and optical properties of the atmospheric aerosol from airborne and surface measurements on the east coast of England. *Atmospheric Environment* 21, 2233-2246, 1987.
- Kim, Y. and Cess, R.D.: Effect of anthropogenic sulphate aerosols on low level cloud albedo over oceans, *J. Geophys. Res.*, 98, 14883-14885. 1993.
- Kim, M.-H., Yoon, S.-C., Kim, S.-W., Sugimoto, N., and Shimizu, A.: Comparison of Vertical Extinction Profiles Obtained from 2 Ground-Based Mie-Scattering Lidars at Gosan, Korea during ABC-EAREX2005, 23rd International Laser Radar Conference, Nara, Japan, 449-450, 2006.
- Kim, S.-W., Berthier, S., Raut, J.-C., Chazette, P., Dulac, F., Yoon, S.-C.: Validation of aerosol and cloud layer structures from the space-borne lidar CALIOP using a ground-based lidar in Seoul, Korea, *Atmos. Chem. Phys.*, 8, 3705–3720, 2008.
- King, M.D., Kaufman, Y.J., Menzel, W.P., and Tanré, D.: Remote sensing of cloud, aerosol, and water vapor properties from the moderate resolution imaging spectrometer (MODIS), *IEEE Trans. Geosci. Remote Sens.*, 30, 2-27, 1992.
- Kirchner, U., Scheer, V. and Vogt, R.: FTIR spectroscopic investigation of the mechanism and kinetics of the heterogeneous reactions of NO<sub>2</sub> and HNO<sub>3</sub> with soot, *Journal of Physical Chemistry A* 104: 8908-8915, 2000.
- Kitchen M. and Squires E. C. Aircraft observation of solar radiation in cloud free atmosphere. *Boundary-Layer Met.* 29, 321-342, 1984.
- Klett, J. D., Stable analytical inversion solution for processing lidar returns. *Appl. Opt.*, 20, 211–220, 1981.
- Klett, Lidar inversion with variable backscatter/extinction ratios. *Appl. Opt.*, 24, 1638–1643, 1985.
- Koepke, P. and Hess, M.: Scattering functions of tropospheric aerosols: the effects of nonspherical particles, *Applied Optics*, 27(12), 1988
- Koepke, P., Hess, M., Schult, I., and Shettle, E. P.: Global aerosol data set. MPI Meteorologie Hamburg Rep. 243, 44 pp, 1997
- Koloutsou-Vakakis, S., Carrico, C. M., Kus, P., Rood, M. J., Li, Z., Shrestha, R., Ogren, J. A., Chow, J. C. and Watson, J. G.: Aerosol properties at a midlatitude Northern Hemisphere continental site, *J. Geophys. Res.* 106(D3): 3019-3032, 2001.

## Bibliographie

- Kotchenruther, R.A., and Hobbs, P.V.: Humidification factors of aerosols from biomass burning in Brazil, *J. Geophys. Res.*, 103, 32081-32089, 1998.
- Kotchenruther, R. A., Hobbs, P. V., and Hegg, D. A.: Humidification factors for atmospheric aerosol off the mid-Atlantic coast of United States, *J. Geophys. Res.*, 104(D2), 2239–2252, 1999.
- Kovalev, V. A., Lidar measurement of the vertical aerosol extinction profiles with range-dependent backscatter-to-extinction ratios. *Appl. Opt.*, 32, 6053–6065, 1993.
- Kunz, G.J.: Bipath Method as a Way to Measure the Spatial Backscatter and Extinction Coefficients with Lidar, *Appl. Opt.* 26, 794-795, 1987.
- Lacis, A.A., and Mishchenko, M.I.: Climate forcing, climate sensitivity, and response: a radiative modeling perspective on atmospheric aerosols, in Report of the Dahlem workshop on Aerosol Forcing of Climate, edited by R.J.C.a.J. Heintzenberg, pp. 11-42, John Wiley and Sons Ltd, Berlin, Germany, 1995.
- Landulfo, E., A. Papayannis, P. Artaxo, A.D.A. Castanho, A.Z. De Freitas, R.F. Souza, N.D. Vieira Junior, M.P.M.P. Jorge, O.R. Sanchez-Ccoyllo and D.S. Moreira, Synergetic measurements of aerosol over Sao Paulo, Brazil, using LIDAR, sunphotometer and satellite data during the dry season. *Atmos. Chem. Phys.*, 3, 1523-1539, 2003.
- Lee, S. C. and Tien, C. L.: Optical constants of soot in hydrocarbon flames. *Proceedings of 18<sup>th</sup> Symp. (Intl.) on Combust.*, Pittsburg, 1981.
- Lenoble, J.: The particulate matter from biomass burning: A tutorial and critical review of its radiative impact, in *Global Biomass Burning: Atmospheric, Climatic, and Biospheric Implications*, edited by J. S. Levine, pp. 381–386, MIT Press, Cambridge, Mass., 1991.
- Lenoble, J.: *Atmospheric Radiative Transfer*, edited by: Deepak, A., Hampton VA, USA, pp532, 1993.
- Léon, J.-F.: Evaluation de l'impact radiatif des aérosols d'origine anthropique à l'échelle régionale grâce à une synergie instrumentale ente télédétection et mesures in situ, Thèse de doctorat de l'Université 7, 2000.
- Léon, J. F., P. Chazette, J. Pelon, F. Dulac, and H. Ramdriamarisoa, Aerosol direct radiative impact over the INDOEX area based on passive and active remote sensing, *J. Geophys. Res.*, 107(D19), 8006, doi:10.1029/2000JD000116, 2002.
- Lesins, G., Chylek, P. and Lohman, U.: A study of internal and external mixing scenarios and its effect on aerosol optical properties and direct radiative forcing, *J. Geophys. Res.* 107(D10,4094), 2002.
- Levin, Z., Joseph, J. H., and Mekler, Y.: Properties of Sharav (Khamsin) dust—Comparison of optical and direct sampling data. *J. Atmos. Sci.*, 37, 882–891, 1980
- Li, J., and Mao, J.: Properties of atmospheric aerosols inverted from optical remote sensing, *Atmos. Environ., Part A*, 24, 2517–2522, 1990.
- Liao, H and Seinfeld, JH.: Radiative forcing by mineral dust aerosols: sensitivity to key variables. *J Geophys Res*, 103, 31637–45, 1998
- Lioussé, C., Cachier, H., and Jennings, S. G.: Optical and thermal measurements of black carbon aerosol content in different environments: Variation of the specific attenuation cross-section, sigma, *Atmos. Environm.*, 27A, 1203–1211, 1993.
- Lioussé, C., Devaux, C., Dulac, F., Cacheir, H.: Aging of Savanna biomass burning aerosols: consequences for their optical properties. *Journal of Atmospheric Chemistry* 22, 1-17, 1995.
- Lohmann, U., and Feichter, J.: Global indirect aerosol effects: A review. *Atmos. Chem. Phys.*, 5, 715–737, 2005.
- Lowenthal, D. H., Watson, J. G., Saxena, P.: Contributions to light extinction during project MOHAVE. *Atmos. Environ.* 34, 2351-2359, 2000.

## Bibliographie

- Lurmann, F. W., A. S. Wexler, S. N. Pandis, S. Musarra, N. Kumar, and J. H. Seinfeld, Modeling urban and regional aerosols: II. Application to California's South coast air basin, *Atmos. Environ.*, 31, 2695–2715, 1997.
- Madronich, S. and Flocke, S.: The role of solar radiation in atmospheric chemistry. In: *Handbook Environmental Chemistry* (ed. P. Boule). Springer-Verlag, Heidelberg, 1–26, 1998.
- Mallet, M., J. C. Roger, S. Despia, O. Dubovik, and J. P. Putaud, Microphysical and optical properties of aerosol particles in urban zone during ESCOMPTE, *Atmos. Res.*, 69, 73–97, 2003.
- Mallet, M. : Etude des propriétés microphysiques et optiques de l'aérosol en zone périurbaine durant ESCOMPTE. Estimation de l'impact radiatif direct, Thèse de doctorat de l'Université de Toulon et du Var, 2003.
- Mallet, M., Roger, J. C., Despia, S., Putaud, J. P., and Dubovik, O.: A study of the mixing state of black carbon in urban zone, *J. Geophys. Res.*, 109, D04202, doi:10.1029/2003JD003940, 2004.
- Mallet, M., Pont, V., Lioussé, C., Gomes, L., Pelon, J., Osborne, S., Haywood, J., Dubuisson, P., Roger, J.C., Mariscal, A., Thouret, V. and Goloub P.: Aerosol optical properties over Djougou (Northern Benin) during the AMMA dry season experiment. Estimation of the local direct radiative forcing of biomass burning aerosols, submitted, *J. Geophys. Res.*, 2008.
- Malm, W. C., Day, D. E., Kreidenweis, S. M., Collett, J. L., and Lee, T.: Humidity-dependent optical properties of fine particles during the big bend regional aerosol and visibility observational study, *J. Geophys. Res.*, 108(D9), 4279, doi:10.1029/2002JD002998, 2003.
- Marchuk, G.I., Mikhailov, G.A., Nazaraliev, M.A., Darbinjan, R.A., Kargin, B.A., et Elepov, B.S.: *The Monte Carlo methods in atmospheric optics*, Springer-Verlag, Berlin, 1980.
- Marley, N.A., Gaffney, J.S., Baird, J.C., Blazer, C.A., Drayton, P.J., and Frederick, J.E.: An Empirical Method for the Determination of the Complex Refractive Index of Size-Fractionated Atmospheric Aerosols for Radiative Transfer Calculations, *Aerosol Science and Technology*, 34: 535-549, 2001.
- Martcorena, B., Bergametti, G., Aumont, B., Callot, Y., Ndoume, C., and Legrand, M.: Modeling the atmospheric dust cycle. 2. Simulation of Saharan dust sources, *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 102, 4387-4404, 1997.
- Martins, J.V., Hobbs, P.V., Weiss, R.E., and Artaxo, P.: Sphericity and morphology of smoke particles from biomass burning in Brazil, *J. Geophys. Res.*, 103, 32051-32057, 1998.
- McClatchey, R.A., Fenn, R.W., Selby, J.E.A., Volz, F.E., Garing, J.S.: *Optical properties of the atmosphere*, (third edition), Air Force Cambridge Research Laboratories, Report AFCRL-72-0497, 1972.
- McCormick, R.A., and Ludwig, H.: Climate modification by atmospheric aerosols, *Science*, 156, 1358-1359, 1967.
- McGraw, H.: *International Critical Tables*, 1928.
- McMurry, P. H.: A review of atmospheric aerosol measurements. *Atmos. Environ.* 34, 1959-1999, 2000.
- Measures, R. M., *Laser Remote Sensing*, Wiley-Interscience, New York, pp 217, 1984.
- Meloni, D. A., Sarra, D., Di Iorio, T, and Fiocco, G.: Influence of the vertical profile of Saharan dust on the visible direct radiative forcing, *J. Quant. Spec. Radiat. Trans.*, 93, 397-413, 2005
- Menut, L., Flamant, C., Pelon, J., and Flamant, P.H.: Urban boundary layer height determination from lidar measurements over the Paris area, *Appl. Opt.*, Vol. 38, No. 6, 945-954, 1999.
- Menut, L., Vautard, R., Flamant, C., et al.: Measurements and modeling of atmospheric pollution over the Paris area: An overview of the ESQUIF project, *Ann. Geophys.*, 18(11), 1467–1481, 2000.
- Mestayer, P., Coll, I.: The Urban Boundary Layer Field experiment over Marseille UBL/CLU-Escompte : Experimental set-up and first results, 114, 315-365, 2005.

## Bibliographie

- Method T. J. and Carlson T. N.: Radiative heating rates and some optical properties of the St. Louis aerosol as inferred from aircraft measurements, *Atmos. Environ.*, 16, 53-66, 1982.
- Mie, G. *Ann. Phys.*, 4, 377- 445, 1908.
- Miller, M. A. and Slingo, A.: The Atmospheric Radiation Measurement (ARM) Mobile Facility (AMF) and its First International Deployment: Measuring Radiative Flux Divergence in West Africa, *Bull. Amer. Met. Soc.*, 88(8), 1229-1244, 2007.
- Mishchenko, M. I.: Light scattering by randomly oriented axially symmetric particles, *J. Opt. Soc. Am.*, 8, 871-882, 1991.
- Mishchenko, M.I., and Travis, L.D.: Light scattering by polydisperse, rotationally symmetric nonspherical particles: linear polarisation, *J. Quant. Spectrosc. Radiativ. Transfer.*, 51, 759-778, 1994.
- Mishchenko, M. I., Travis, L. D. and Macke, A.: Scattering of light by polydisperse, randomly oriented, finite circular cylinders, *Appl. Opt.*, vol. 35, 4927-4940 1996.
- Mishchenko, M. I., Travis, L. W., Kahn, R. A., and West, R. A: Modeling phase functions for dustlike tropospheric aerosols using a shape mixture of randomly oriented polydisperse spheroids. *J. Geophys. Res.*, 102, 16831–16847, 1997.
- Mishchenko, M.I.: Calculation of the amplitude matrix for a nonspherical particle in a fixed orientation, *Appl. Opt.*, 39, 1026-1031, 2000.
- Mishchenko, M.I., Travis, L.D., and Lacis, A.A.: Scattering, absorption and emission of light by small particles, Cambridge University Press, <http://www.giss.nasa.gov/~crmim/books.html>, 2002.
- Moore W. H., Direct measurements of radiative and turbulent flux convergence in the lowest 1000 m of the convective boundary layer. *Boundary Layer Met.* 22,283-294., 1982.
- Morgan, M.A., and Mei, K.K.: Finite-element computation of scattering by inhomogeneous penetrable bodies of revolution, *IEEE Trans. Antennas Propag.*, 27, 202-214, 1979.
- Moshhammer, H. and Neuberger, M.: The active surface of suspended particles as a predictor of lung function and pulmonary symptoms in Austrian school children. *Atmos. Environ.* 37, 1737–1744., 2003.
- Moulin, C., F. Dulac, C. E. Lambert, P. Chazette, I. Jankowiak, B. Chatenet, and F. Lavenu: Long-term daily monitoring of Saharan dust load over ocean using Meteosat ISCCP-B2 data 2. Accuracy of the method and validation using sun photometer measurements, *J. Geophys. Res.*, 102, 16 959 – 16 969, 1997.
- Moulin, C., Gordon, H. R., Banzon, V. F., and Evans, R. H.: Assessment of Saharan dust absorption in the visible from SeaWiFS imagery, *J. Geophys. Res.*, 106(D16), 18 239–18 249, 2001.
- Müller, H.: The foundations of Optics, *J. Opt. Soc. Am.*, 38, 661, 1948.
- Mugnai, A., and Wiscombe, W.J.: Scattering of radiation by moderately nonspherical particules, *J. Atmos. Sci.*, 37, 1291-1307, 1980.
- Mugnai, A., and Wiscombe, W.J.: Scattering from nonspherical Chebyshev particles. 3. Variability in angular scattering patterns, *Appl. Opt.*, 28, 3061-3073, 1989.
- Mulholland, G.W., Bohren, C.F., and Fuller, K.A.: Light scattering by agglomerates: coupled electric and magnetic dipole method, *Langmuir*, 10, 2533-2546, 1994.
- Müller, D., Wandinger, U., and Ansmann, A: Microphysical particle parameters from extinction and backscatter lidar data by inversion with regularization: Theory, *Appl. Opt.*, 38, 2346–2357, 1999.
- Müller, D., Ansmann, A., Wagner, F., Franke, K., Althausen, D.: European pollution outbreaks during ACE 2: Microphysical particle properties and single-scattering albedo inferred from multiwavelength lidar observations, *J. Geophys. Res.*, 107(D15), 4248, doi: 10.1029/2001JD001110, 2002.

## Bibliographie

- Munoz, O., Volten, H., Vermeulen, K., et al.: Scattering matrices of fly-ash and green clag particles, In light scattering by nonspherical particles: Halifax contributions, eds. G. Videen, Q. Fu, and P. Chylek, pp 45-48 (Army Research Laboratory, Adelphi, MD), 2000.
- Murayama T., Sugimoto, N., Uno, K., Hagiwara, N., Liu, Z., Matsui, I., Sakai, T., Shibata, T., Arao, K., Sohn, B.J., Won, J.-G., and Yoon, S.-C.: Ground-based network observation of Asian dust events of April 1998 in East Asia. *Journal of Geophysical Research*, vol.106, no.D16, p.18345 -18360, 2001.
- Myhre, G., and Stordal, F.: On the tradeoff of the solar and thermal infrared radiative impact of contrails, *Geophys. Res. Lett.*, 28, 3119–3122, 2001.
- Myhre, G. F., Berntsen, T. K., Haywood, J. M., Sundet, J. K., Holben, B. N., Johnsrud, M., and Stordal, F.: Modelling the solar radiative impact of aerosols from biomass burning during SAFARI-2000 experiment. *J. Geophys. Res.*, 108(D13), 8501, doi:10.1029/2002JD002313., 2003a.
- Myhre, G., Grini, A., Haywood, J.M., Stordal, F., Chatenet, B., Tanré, D., Sundet, J., and Isaksen, I.: Modeling the radiative impact of mineral dust during the Saharan Dust Experiment (SHADE) campaign, *J. Geophys. Res.*, 108(D18), doi:10.1029/2002JD002566, 2003b.
- Nakajima, T., Tanaka, M. and Yamauchi, T.: Retrieval of the optical properties of the aerosols from aureole and extinction data. *Appl. Opt*, 22, 2951-2959, 1983.
- Nakajima, T., Tonna, G., Rao, R., Boi, P., Kaufman, Y. and Holben, B.: Use of sky brightness measurements from ground for remote sensing of particulate polydispersions. *Appl. Opt*, 35, 2672-2686, 1996.
- Neckel, H., and Labs, D.: The solar radiation between 3300 and 12500 Å, *Sol. Phys.*, 90, 205–258, 1984.
- Nessler, R., Weingartner, E. and Baltensperger, U.: Adaptation of dry nephelometer measurements to ambient conditions at the Jungfraujoch, *Environ. Sci. Technol.* 39: 2219-2228, 2005a.
- Nessler, R., Weingartner, E., Baltensperger, U.: Effect of humidity on aerosol light absorption and its implications for extinction and the single scattering albedo illustrated for a site in the lower free troposphere, *J. Aerosol Sci.* 36 (8), 958-972. 2005b.
- Nicolet, M. : On the molecular scattering in the terrestrial atmosphere, *Planet. Space Sci.*, 32, 1467, 1984.
- Oguchi, T.: Scattering properties of oblate raindrops and cross polarization of radio waves due to rain: calculations at 19.3 and 34.8 GHz, *J. Radio Res. Lab. Japan*, 20, 79-118, 1973.
- Oke, T.R.: *Boundary Layer Climates*, 1988.
- Osborne, S. R., Johnson, B., Haywood, J.: Physical and optical properties of mineral dust aerosol during the Dust and Biomass Experiment (DABEX), submitted, *J. Geophys. Res.*, 2008
- Ouimette, J.R., Flagan, R.C., The extinction coefficient of multicomponent aerosols. *Atmospheric Environment* 16, 2405-2419, 1982.
- Pace, G., Meloni, D., and di Sarra, A.: Forest fire aerosol over the Mediterranean basin during summer 2003 *J. Geophys. Res.*, 110, D21202, doi:10.1029/2005JD005986, 2005
- Pandis, S. N., Wexler, A. S., and Seinfeld, J. H.: Dynamics of tropospheric aerosols, *J. Phys. Chem.*, 99, 9646–9659, 1995.
- Patterson, E. M., D. A. Gillete, and B. H. Stockton, Complex index of refraction between 300 and 700 nm for Saharan aerosol, *J. Geophys. Res.*, 82, 3153– 3160, 1977.
- Pelon J., C. Flamant, P. Chazette, J. F. Leon, D. Tanré, M. Sicard and S. K. Satheesh: Characterization of aerosol spatial distribution and optical properties over the Indian Ocean from airborne LIDAR and radiometry during INDOEX'99, *J. Geophys. Res.*, 107, D19, 8029, doi:10.1029/2001JD000402, 2002.



## Bibliographie

- Penner, J. E., Charlson, R.J., Hales, J.M., Laulainen, N.S., Leifer, R., Novakov, T., Ogren, J., Radke, L.F., Schwartz, S.E., and Travis, L.: Quantifying and minimizing uncertainty of climate forcing by anthropogenic aerosols, *Bull. Am. Meteorol. Soc.*, 75, 375–400, 1994.
- Penner, J.E., et al.: Aerosols, their direct and indirect effects. In: *Climate Change 2001: The Scientific Basis. Contribution of Working Group I to the Third Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change* [Houghton, J.T., et al. (eds.)]. Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA, pp. 289– 348, 2001.
- Perrone, M.R., Barnaba, F., De Tomasi, F., Gobbi, G.P. and Tafuro, A.M.: Imaginary refractive-index effects on desert-aerosol extinction versus backscatter relationships at 351 nm: numerical computations and comparison with Raman lidar measurements, *Applied Optics*, 43(29), 2004
- Pilewskie, P., Pommier, J., Bergstrom, R., Gore, W., Rabbette, M., Howard, S., Schmid, B., and Hobbs, P. V.: Solar Spectral Radiative Forcing During the South African Regional Science Initiative, *J. Geophys. Res.*, 108, doi:10.1029/2002JD002411, 2003.
- Pilinis, C., Pandis, S. N., and Seinfeld, J.: Sensitivity of direct climate forcing by atmospheric aerosols to aerosols size and composition. *J. Geophys. Res.* 100, 18739–18754, 1995.
- Pincus, R. and Baker, M.: Precipitation, solar absorption, and albedo susceptibility in marine boundary layer clouds, *Nature*, 372, 250-252, 1994.
- Pinnick, R. G., Carroll, D. E., and Hofmann, D. J.: Polarized light scattered from monodisperse randomly oriented nonspherical aerosol particles: measurements, *Applied Optics*, 15(2), 1976.
- Pinnick, R. G., Fernandez, G., Martinez-Andazola, E., Hinds, B. D., Hansen, A. D. A. and Fuller, K.: Aerosol in the arid southwestern united states: measurements of mass loading, volatility, size distribution, absorption characteristics, black carbon content, and vertical structure to 7 km above sea level, *Journal of Geophysical Research* 98(D2): 2651-2666, 1993.
- Plana-Fattori, A., Legrand, M., Tanré, D., Devaux, C., Vermeulen, A. and Dubuisson, P.: Estimating of the Atmospheric Water Vapor Content from Sun Photometer Measurements, *J. Appl. Meteor.*, 37, 790-804, 1998.
- Pluchino, A., Goldberg, S. S., Dowling, J. M. and Randall, C. M.: Refractive index measurements of single micronized carbon particles, *Appl. Opt.* 19: 3370-3372, 1980.
- Prentice, I. C., et al.: The carbon cycle and atmospheric carbon dioxide, In *Climate Change 2001 : The Scientific Basis*, Cambridge University Press, Cambridge, p. 185- 237, 2001.
- Prospero, J. M., Ginoux, P., Torres, O., and Nicholson, S.: Environmental characterization of global sources of atmospheric soil dust derived from NIMBUS-7 TOMS absorbing aerosol product, *Rev. Geophys.*, 40(1), doi:10.1029/2000RG000095, 2002.
- Pruppacher, H.R. and Klett, J.D.: *Microphysics of cloud and precipitation*, D. Reidel, Dordrecht, The Netherlands, 1980.
- Pruppacher, H.R. and Klett, J.D.: *Microphysics of clouds and precipitation*, Kluwer Academic, Dordrecht, 1997.
- Pueschel, R.F., Van Valin, C.C., Castillo, R.C., Kandlech, R.C., and Ganor, E.: Aerosols in polluted versus non-polluted air masses: long range transport and effect on clouds, *J. Climate and Applied Meteorology*, 25, 1908-1917, 1986.
- Purcell, E.M., and Pennypacker, C.R.: Scattering and absorption of light by nonspherical dielectric grains, *Astrophys. J.*, 186, 705-714, 1973.
- Quinn, P.K., Coffman, D.J., Local closure during the First Aerosol Characterization Experiment (ACE1): aerosol mass concentration and scattering and backscattering coefficients. *J. Geophys. Res.* 103, 15575– 15596, 1998.
- Radke, L. F, Hegg, D. A., Lyons, J. H., Brock, C. A., Hobbs, P. V., Weiss, R., and Rasmussen, R.: Airborne measurements on smokes from biomass burning, in: *Aerosols and Climate*,

## Bibliographie

- edited by: Hobbs, P. V. and McCormick, M. P., Deepak Publishing, Hampton VA, 411–422, 1988.
- Ramanathan, V., Crutzen, P.J., Lelieveld, J., Althausen, D., Anderson, J., Andreae, M.O., Cantrell, W., Cass, G., Chung, C.E., Clarke, A.D., Collins, W.D., Coakley, J.A., Dulac, F., Heintzenberg, J., Heymsfield, A.J., Holben, B., Hudson, J., Jayaraman, A., Kiehl, T., Krishnamurthi, T.N., Lubin, D., Mitra, A.P., McFarquarh, G., Novakov, T., Ogren, J.A., Podgorny, I.A., Prather, K., Prospero, J.M., Priestley, K., Quinn, P.K., Rajeev, K., Rasch, P., Rupert, S., Sadourny, R., Satheesh, S.K., Sheridan, P., Shaw, G.E., and Valero, F.P.J.: Indian Ocean experiment: An integrated analysis of the climate forcing and effects of the great Indo-Asian haze. *J. Geophys. Res.*, 106(D22), 28371–28398, 2001.
- Ramaswamy, V., et al.: Radiative forcing of climate change. In: *Climate Change 2001: The Scientific Basis. Contribution of Working Group I to the Third Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change* [Houghton, J.T., et al. (eds.)]. Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA, pp. 349– 416, 2001.
- Randriamiarisoa H., P. Chazette, and G. Mégie, The columnar retrieved single scattering albedo from NO<sub>2</sub> photolysis rate, *Tellus B*, 56, 118-127, 2004a.
- Randriamiarisoa, H. : L'aérosol anthropique et sa contribution radiative, Thèse de doctorat de l'Université Paris 6, 2004b.
- Randriamiarisoa, H., Chazette, P., Couvert, P., Sanak, J., and Mégie, G.: Relative humidity impact on aerosol parameters in a Paris suburban area, *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 1389-1407, 2006.
- Raut, J.-C., and Chazette, P.: Retrieval of aerosol complex refractive index from a synergy between lidar, sunphotometer and in situ measurements during LISAIR experiment, *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 2797-2815, 2007
- Raut, J.-C., and Chazette, P.: Vertical profiles of urban aerosol complex refractive index in the frame of ESQUIF airborne measurements, *Atmos. Chem. Phys.*, 8, 901–919, 2008a.
- Raut, J.-C. and Chazette, P.: Radiative budget in the presence of multi-layered aerosol structures in the frame of AMMA SOP-0, submitted to *Atmos. Chem. Phys.*, 2008b.
- Raut, J.-C., Chazette, P., and Fortain, A.: Characterization of aerosols in an underground railway station in Paris: Optical, microphysical and chemical measurements, submitted to *Atmos. Environ.*, 2008a.
- Raut, J.-C., Chazette, P., Fortain, A.: New approach using lidar measurements to characterize spatiotemporal aerosol mass distribution in an underground railway station in Paris, submitted to *Atmos. Environ.*, 2008b.
- Rayleigh, L.: On the transmission of light through an atmosphere containing many small particles in suspension, and on the origin of the blue of the sky, *Phil. Mag.*, 47, 375-384, 1889.
- Reddy, M.S, Boucher, O., Balkanski, Y., and Schulz, M.: Aerosol optical depths and direct radiative perturbations by species and source type, *Geophys. Res. Lett.*, 32, L12803, 10.1029/2004GL021743, 2005.
- Redelsperger, J-L., Thorncroft, C., Diedhiou, A., Lebel, T., Parker, D., Polcher, J.: African Monsoon Multidisciplinary Analysis : An international research project and field campaign, *BAMS*, DOI:10.1175/BAMS-87-12-1739, 2006
- Redemann, J., R.P. Turco, K.N., Liou, P.B. Russell, R.W. Bergstrom, B. Schmid, J.M. Livingston, P.V. Hobbs, W.S. Hartley, S. Ismail, R.A. Ferrare, and E.V. Browell: Retrieving the vertical structure of the effective aerosol complex index of refraction from a combination of aerosol in situ and remote sensing measurements during TARFOX, *J. Geophys. Res. (D)*, vol. 105, D8, 9949-9970, 2000.
- Reid, J. S. and Hobbs, P. V.: Physical and optical properties of smoke from individual biomass fires in Brazil, *J. Geophys. Res.*, 103, 32 013–32 031, 1998.

## Bibliographie

- Reid, J. S., Hobbs, P. V., Ferek, R. J., Blake, D. R., Martins, J. V., Dunlap, M. R., and Liousse, C.: Physical, chemical and optical properties of regional hazes dominated by smoke in Brazil, *J. Geophys. Res.*, 103, 32 059–32 080, 1998.
- Remer, L. A., Kaufman, Y. J., Holben, B. N., Thompson, A. M., and McNamara, D.: Biomass burning aerosol size distribution and modeled optical properties, *J. Geophys. Res.*, 103, 31 879– 31 891, 1998.
- Remer, L.A., Tanré, D., Kaufman, Y.J., Ichoku, C., Mattoo, S., Levy, R., Chu, D.A., Holben, B., Dubovik, O., Smirnov, A., Martins, J.V., Li, R.-R., and Ahmad, Z.: Validation of MODIS aerosol retrieval over ocean, *Geophysical research letters*, 29 (12), 1618, doi:10.1029/2001GL013204, 2002.
- Rosenfeld, D.: TRMM observed first direct evidence of smoke from forest fires inhibiting rainfall, *Geophysical research letters*, 26, 3105-3108, 1999.
- Rosenfeld, D.: Suppression of rain and snow by urban and industrial air pollution, *Science*, 287, 1793-1796, 2000.
- Rosenfeld, D., Lahav, R., Khain, A. P., and Pinsky, M.: The role of sea-spray in cleansing air pollution over ocean via cloud processes, *Science*, 297, 890, 1667–1670, 2002.
- Ross, J. L., Hobbs, P. V., and Holben, B.: Radiative characteristics of regional hazes dominated by smoke from biomass burning in Brazil: Closure tests and direct radiative forcing, *J. Geophys. Res.*, 103(D24), 31 925–31 941, 1998.
- Salomonson, V. V., Barnes, W. L., Maymon, P. W., Montgomery, H. E., and Ostrow, H.: MODIS: Advanced Facility Instrument for Studies of the Earth as a System, *IEEE Trans. Geosci. Remote Sens.*, 27, 145-153, 1989.
- Sasano, Y., and E. V. Browell, and S. Ismail, Error caused by using a constant extinction/backscattering ratio in the lidar solution. *Appl. Opt.*, 24, 3929–3932, 1985.
- Schkolnik, G., Chand, D., Hoffer, A., Andreae, M.O., Erlick, C., Swietlicki, E., Rudich, Y.: Constraining the density and complex refractive index of elemental and organic carbon in biomass burning aerosol using optical and chemical measurements, *Atmospheric Environment*, 41 1107–1118, 2007.
- Schwartz, S.E.: Connections between aerosol properties and climate forcing., in Report of the Dahlem workshop on Aerosol Forcing of Climate, edited by R.J.C.a.J. Heintzenberg, pp. 251-280, John Wiley and Sons Ltd, Berlin, Germany, 1995.
- Sciare, J., Cachier, H., Oikonomou, K., Ausset, P., Sarda-Estève, R., Mihalopoulos, N.: Characterization of carbonaceous aerosols during the MINOS campaign in Crete, July-August 2001. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 3, 1743-1757, 2003.
- Seinfeld, J. H. and Pandis, S. N., *Atmospheric Chemistry and Physics*, John Wiley & Sons, New York, 408 – 440, 1998.
- Seinfeld, J.H., Carmichael, G.R., Arimoto, R., et al.: ACE-ASIA: Regional Climatic and Atmospheric Chemical Effects of Asian Dust and Pollution. *Bull. Amer. Meteorol. Soc.*, 85, 367–380, 2004.
- Shettle, E. P. and Fenn, R. W.: Models for the Aerosols of the Lower Atmosphere and the Effects of Humidity Variations on their Optical Properties. Project 7670, Air Force Geophysics Laboratory Environmental Research Papers 676, AFGL-TR79-TR79-0214, Massachusetts, 94 pp., 1979.
- Shimizu, A., Sugimoto, N., Matsui, I., Arao, K., Uno, I., Murayama, T., Kagawa, N., Aoki, K., Uchiyama, A., and Yamazaki, A.: Continuous observations of Asian dust and other aerosols by polarization lidar in China and Japan during ACE-Asia, *J. Geophys. Res.*, 109, D19S17, doi:10.1029/2002JD003253, 2004.
- Sicard, M., P. Chazette, J. Pelon, J. G. Won, and S. C. Yoon, Variational method for the retrieval of the optical thickness and the backscatter coefficient from multiangle lidar profiles, *Appl. Opt.*, 41, 493 – 502, 2002.

## Bibliographie

- Silvester, P.P., and Ferrari, R.L.: Finite elements of electrical engineers, Cambridge University Press, New-York, 1996.
- Sinyuk, A., O. Torres, and O. Dubovik, Combined use of satellite and surface observations to infer the imaginary part of refractive index of Saharan dust, *Geophysical Research Letters*, 30 (2), 1081, doi:10.1029/2002GL016189, 2003.
- Slinn, S.A., Slinn, W.G.N.: Prediction for particle deposition on natural waters, *Atmos. Environ.*, 14, 1013-1016, 1980.
- Sloane, C. S.: Optical properties of aerosols-comparison of measurements with model calculations, *Atmos. Environ.* 17: 409-416, 1983.
- Sloane, C. S.: Optical properties of aerosols of mixed composition, *Atmos. Environ.* 18(4): 871-878, 1984.
- Sloane, C. S.: Effect of composition on aerosol light scattering efficiencies, *Atmos. Environ.* 20(5): 1025-1037, 1986.
- Sloane, C. S., Watson, J., Chow, J., Pritchett, L. and Richards, L. W.: Size-segregated fine particle measurements by chemical species and their impact on visibility impairment in Denver, *Atmos. Environ.* 25A: 1013-1024, 1991.
- Smith, F. W.: Optical-constant of a hydrogenated amorphous-carbon film, *J. Appl. Phys.* 55(3): 764-771, 1984.
- Sokolik, I. N., Andronova, A., and Johnson, T. C.: Complex refractive index of atmospheric dust aerosols, *Atmos. Environ.*, 27, 2495–2502, 1993.
- Sokolik, IN and Toon, OB.: Direct radiative forcing by anthropogenic airborne mineral aerosols. *Nature*; 381, 681 - 683, 1996.
- Sokolik, I., Toon, O., and Bergstrom, R.: Modeling the radiative characteristics of airborne mineral aerosols at infrared wavelengths, *J. Geophys. Res.*, 103, 8813–8826, 1998.
- Sokolik, I.N., and Toon, O.B.: Incorporation of mineralogical composition into models of the radiative properties of mineral aerosol from UV to IR wavelengths, *Journal of Geophysical Research (D)*, 104 (D8), 9423-9444, 1999.
- Sokolik, I.N., D.M. Winker, G. Bergametti, D.A. Gillette, G. Carmichael, Y.J. Kaufman, L. Gomes, L. Schuetz, and J.E. Penner, Introduction to special section: Outstanding problems in quantifying the radiative impacts of mineral dust, *Journal of Geophysical Research (D)*, 106 (D16), 18015-18027, 2001.
- Stamnes, K., Tsay, S. C., Wiscombe, W., and Jayaweera, K.: Numerical stable algorithm for discrete-ordinate-method radiative transfer in scattering and emitting layered media, *Appl. Opt.*, 27, 2502–2509, 1988.
- Stelson, A.W., and Seinfeld, J.H.: Thermodynamic prediction of the water activity,  $\text{NH}_4\text{NO}_3$  dissociation constant, density, and refractive index for the  $\text{NH}_4\text{NO}_3$ - $[\text{NH}_4]_2\text{SO}_4$ - $\text{H}_2\text{O}$  system at 25°C, *Atmos. Environ.*, 16, 2507-2514, 1982.
- Stelson, A.: Urban aerosol refractive index prediction by partial molar refraction approach, *Environ. Sci. Technol.*, 24(11), 1676-1679, 1990.
- Stokes, G. G.: On the composition and resolution of streams of polarized light from different sources, *Trans. Camb. Philos. Soc.*, 9, 399-416, 1852.
- Strapp, J.W., Leaitch, W.R., and Liu, P.S.K.: Hydrated and dried aerosol size distribution measurements from the particle measuring systems FSSP-300 probe and the deiced PCASP-100X probe, *J. Atmos. Oceanic Technol.*, 9, 548-555, 1992.
- Stull, R.B.: An introduction to boundary layer meteorology, Ed. Springer, 1988.
- Sugimoto, N., Matsui, I., Shimizu, A., Uno, I., Asai, K., Endoh, T., and Nakajima, T.: Observation of dust and anthropogenic aerosol plumes in the Northwest Pacific with a two-wavelength polarization lidar on board the research vessel Mirai, *Geophys. Res. Lett.* 29, 10,1029/2002GL015112, 2002.

## Bibliographie

- Sugimoto, N., Shimizu, A., Matsui, I., Itsushi, U., Arao, K., Chen, Y., Zhao, S., Zhou, J., and Lee, C.-H.: Study of Dust Transport Using a Network of Continuously Operated Polarization Lidars, *Water, Air, and Soil Pollution*, 5, 145-157, 2005.
- Sugimoto, N., Shimizu, A., Matsui, I., Dong, X., Zhou, J., Bai, X., Zhou, J., Lee, C.H., Yoon, S.-C., Okamoto H., and Uno I.: Network Observations of Asian Dust and Air Pollution Aerosols Using Two-Wavelength Polarization Lidars, 23rd International Laser Radar Conference, Nara, Japan, 851-854, 2006.
- Swap, R.J., Annegarn, H.J., Suttles, J.T., et al.: The Southern African Regional Science Initiative (SAFARI 2000): Dry-Season Field Campaign: An Overview, *South African Journal of Science*, 98, 125-130, 2002.
- Swap, R. J., Annegarn, H. J., Suttles, J. T., King, M. D., Platnick, S., Privette, J. L., Scholes, R. J.: Africa burning: A thematic analysis of the Southern African Regional Science Initiative (SAFARI 2000), *J. Geophys. Res.*, 108, D13, 8465, doi:10.1029/2003JD003747, 2003
- Takamura, T., and Sasano, Y.: Ratio of aerosol backscatter to extinction coefficients as determined from angular scattering measurements for use in atmospheric lidar applications, *Opt. Quant. Electron.*, 19, 293-302, 1987.
- Takamura, T., Y. Sasano, and T. Hayasaka, Tropospheric aerosol optical properties derived from lidar, sunphotometer and optical particle counter measurements, *Appl. Opt.*, 33, 7132-7140, 1994.
- Tang, I.N., Wong, W.T., Munkelwitz, H.R., The relative importance of atmospheric sulfates and nitrates in visibility reduction. *Atmospheric Environment* 12, 2463–2471, 1981.
- Tang, I.N. and H. R. Munkelwitz, Composition and temperature dependence of the deliquescence properties of hygroscopic aerosols. *Atmos. Env.*, 27A, 467-473, 1993.
- Tang, I. N. and Munkelwitz, H. R.: Water activities, densities and refractive indices of aqueous sulfates and sodium nitrate droplets of atmospheric importance, *J. Geophys. Res.* 99: 18801-18808, 1994.
- Tang, I. N.: Chemical and size effects of hygroscopic aerosols on light scattering coefficients. *J. Geophys. Res.* 101, 19245-19250, 1996.
- Tanré, D., Remer, L. A., Kaufman, Y. J., Mattoo, S., Hobbs, P. V., Livingston, J. M., Russell, P. B., and Smirnov, A.: Retrieval of aerosol optical thickness and size distribution over ocean from the MODIS airborne simulator during TARFOX, *J. Geophys. Res.*, 104, 2261– 2278, 1999.
- Tanré, D., Kaufman, Y.J., Holben, B.N., Chatenet, B., Karnieli, A., Lavenu, F., Blarel, L., Dubovik, O., Remer, L.A., Smirnov, A: Climatology of dust aerosol size distribution and optical properties derived from remotely sensed data in the solar spectrum. *J. Geophys. Res.*, 106, 18205–18217, 2001.
- Tanré, D., Haywood, J.M., Pelon, J., Léon, J.-F., Chatenet, B., Formenti, P., Francis, P., Goloub, P., Highwood, E.J., and Myhre, G.: Measurement and modelling of the Saharan dust radiative impact : overview of the SaHaran Dust Experiment (SHADE), *J. Geophys. Res.*, accepted for SHADE Special Issue, 2003.
- Taylor, K. E. and Penner, J. E.: Reponse of climate system to atmospheric aerosols and greenhouse gases. *Nature*, 369:734–737, 1994.
- Tegen, I., Fung, I.: Contribution to the atmospheric mineral aerosol load from land surface modification, *J. Geophys. Res. (D)*, 100, 18707-18726, 1995.
- Tegen, I., Lacis, A.A., and Fung, I.: The influence of mineral aerosols from disturbed soils on the global radiation budget, *Nature*, 380, 419--422, 1996.
- Todd, M. C., Washington, R., Martins, J. V., Dubovik, O., Lizcano, G., M'Bainayel, S., and Engelstaedter S.: Mineral dust emission from the Bodélé Depression, Northern Chad, during BoDEx 2005, *J. Geophys. Res.*, 112, D06207, doi:10.1029/2006JD007170, 2007.

## Bibliographie

- Tomasi, C., V. Vitale, and E. Caroli, Sahara dust program— II. Determination of the vertical particulate mass loading by using extinction models based on Junge-type size distributions. *J. Aerosol Sci.*, 14, 529–539, 1983.
- Tombette, M. and Sportisse, B.: Aerosol modeling at a regional scale: Model-to data comparison and sensitivity analysis over Greater Paris. *Atmos. Env.* In press, doi :10.1016/j.atmosenv.2006.10.037, 2007.
- Toon, O. B., McKay, C. P. and Ackerman, T. P.: Rapid calculation of radiative heating rates and photodissociation rates in inhomogeneous multiple scattering atmospheres. *J. Geophys. Res.*, 94, 16827-16301, 1989.
- Torres, O., Bhartia, P. K., Herman, J. R., Ahmad, Z., and Gleason, J.: Derivation of aerosol properties from satellite measurements of back scattered ultraviolet radiation: Theoretical basis. *J. Geophys. Res.*, 103, 17 099–17110, 1998
- Twomey, S.: Pollution and the planetary albedo, *Atmos. Environ.*, 8, 1251-1256, 1974.
- Twomey, S.: The influence of pollution on the shortwave albedo of clouds, *J. Atmos. Sci.*, 34, 1149-1152, 1977.
- Twomey, S., Piepgrass, M., and Wolfe, T.: An assessment of the impact of pollution on global cloud albedo, *Tellus*, 36B, 356-366, 1984.
- Van de Hulst, H. C.: *Light Scattering by Small Particles*. Wiley, New York, 1957.
- Van de Hulst, H. C.: *Multiple Light Scattering: Tables, Formulas, and Applications*, Academic Press, London, 1980.
- Van de Hulst, H. C.: *Light Scattering by Small Particles*, 470 pp., Dover, Mineola, N.Y., 1981.
- Vautard, R., Menut, L., Beekmann, M., Chazette, P., Flamant, P.H., Gombert, D., Guédalia, D., Kley, D., Lefebvre, M-P., Martin, D., Mégie, G., Perros, P., and Toupance, G.: A synthesis of the Air Pollution Over the Paris Region (ESQUIF) field campaign, *J. Geophys. Res.*, 108(D17), 8558, 2003.
- Vermote, E.D., Tanré, D., Deuzé, J.L., Herman, M., Morcette, J.J.: Second simulation of the satellite signal in the solar spectrum. *IEEE Transactions on Geoscience and Remote Sensing*, Vol. 35, pp. 675-686, 1997.
- Vogelmann, A., Flatau, P., Szczodrak, M., Markowicz, K., and Minnett, P.: Observations of large aerosol infrared forcing at the surface, *Geophys. Res. Lett.*, 30, 1655, doi :10.1029/2002GL016 829, 2003.
- Volten, H., Munoz, O., Rol, E., de Haan, J. F., Vassen, W., Hovenier, J. W., Muinonen, K. and Nousiainen, T.: Scattering matrices of mineral aerosol particles at 441.6 nm and 632.8 nm. *J. Geophys. Res.*, 106, 17375-17401, 2001.
- Volz, F. E.: Infrared refractive index of atmospheric aerosol substance, *Appl. Opt.*, 11:755-759, 1972a.
- Volz, F. E.: Infrared absorption by atmospheric aerosol substance, *J. Geophys. Res.*, 77:1017-1031, 1972b.
- Volz, F.E., Infrared Optical Constants of Ammonium Sulfate, Sahara Dust, Volcanic Pumice, and Fly ash, *Applied Optics*, 12, 564-568, 1973.
- Von Hoyningen-Huene, W., Schmidt, T., Chan, A.K., Heintzenberg, J., Neusuess, C.: Climate-relevant aerosol parameters of South-East Asian forest fire haze, *Journal of Aerosol Science*, 29, 1259-1260, 1998.
- Voshchinnikov, N.V., and Farafonov, V.G.: Optical properties of spheroidal particles. *Astrophys. Space Sci.*, 204, 19-86, 1993.
- Wagner, F., Müller, D., Ansmann, A.: Comparison of the radiative impact of aerosols derived from vertically resolved (lidar) and vertically integrated (Sun photometer) measurements: Example of an Indian aerosol plume, *J. Geophys. Res.*, 106(D19), 22,861–22,870, doi: 0148-0227/01/2001JD00032, 2001.

## Bibliographie

- Wandinger, U., Muller, D., Bockmann, C., Althausen, D., Matthias, V., Bosenberg, J., Weiss, V., Fieberg, M., Wendisch, M., Stohl, A., and Ansmann, A.: Optical and microphysical characterization of biomass burning and industrial pollution aerosols from multi-wavelength lidar and aircraft measurements, *J. Geophys. Res.*, 107, 8125, doi:10.1029/2000JD000202, 2002.
- Wang, J., Christopher, S. A., Brechtel, F., Kim, J., Schmid, B., Redemann, J., Russell, P. B., Quinn, P., and Holben, B. N.: Geostationary Satellite Retrievals of Aerosol Optical Thickness during ACE-Asia, *J. Geophys. Res.*, 108(23), 8657, doi:10.1029/2003JD003580, 2003.
- Waterman, P.C.: Matrix formulation of electromagnetic scattering, *Proc. IEEE*, 53, 805-812, 1965.
- Weingartner, E., Gysel, M., and Baltensperger, U.: Hygroscopicity of aerosol particles at low temperatures. 1. New low-temperature H-TDMA instrument: set-up and first applications, *Environ. Sci. Technol.*, 36, 55-62, 2002.
- Westphal, D. L. and Toon, O. B.: Simulations of microphysical, radiative, and dynamical processes in a continental-scale forest fire smoke plume. *J. Geophys. Res.*, 96, 22379–22400, 1991
- Whitby, K.T. and Cantrell, B.: Fine particles, in International Conference on Environmental sensing and assessment, Las Vegas, NV, Institute of Electrical and Electronic Engineers, 1976.
- Whitby, K.T.: The physical characteristics of sulfur aerosols, *Atmos. Environ.*, 12, 135-159, 1978.
- White, W.H., Roberts, P.T., On the nature and origins of visibility-reducing aerosols in the Los Angeles air basin. *Atmospheric Environment* 11, 803–812, 1977.
- Winker, D. M., Hunt, W. H. and Hostetler, C. A.: Status and Performance of the CALIOP Lidar. *Proc. SPIE*, 5575, pp. 8-15, 2004.
- WMO: Radiation commission of IAMAP meeting of experts on aerosol and their climatic effects. World Meteorological Organization Rep. WCP55, 28–30, 1983
- World Climate Program (WCP): A preliminary cloudless standard atmosphere for radiation computation, World Meteorol. Organ., Geneva, 1986.
- Yamasoe, M. A., Kaufman, Y. J., Dubovik, O., Remer, L. A., Holben, B. N., and Artaxo, P.: Retrieval of the real part of the refractive index of smoke particles from Sun/sky measurements during SCAR-B, *J. Geophys. Res.*, 103, 31,893–31,902, 1998.
- Yang, P., and Liou, K.N.: An efficient algorithm for truncating spatial domain in modelling light scattering by finite-difference technique, *J. Comput. Phys.*, 140, 346-369, 1998.
- Yee, K.S.: Numerical solution of initial boundary value problems involving Maxwell's equations in isotropic media, *IEEE Trans. Antennas Propag.*, 14, 302-307, 1966.
- Zhang, X. Q., McMurry, P. H.: Evaporative losses of fine particulate nitrates during sampling. *Atmos. Environ.* 26A, 3305-3312, 1993.
- Zobel R. F.: Temperature and humidity changes in the lowest few thousand feet of the atmosphere during a fine summer day in southern England. *Q. J. R. Met. Soc.* 92, 196-209, 1966.

## Annexe A

### Liste des publications

**Raut**, J.-C. and Chazette, P.: Radiative budget in the presence of multi-layered aerosol structures in the frame of AMMA SOP-0, submitted to Atmos. Chem. Phys.

**Raut**, J.-C., Chazette, P., and Fortain, A.: Link between aerosol optical, microphysical and chemical measurements in an underground railway station in Paris, submitted to Atmos. Environ.

**Raut**, J.-C., Chazette, P., Fortain, A.: New approach using lidar measurements to characterize spatiotemporal aerosol mass distribution in an underground railway station in Paris, submitted to Atmos. Environ.

**Raut**, J.-C., and Chazette, P.: Vertical profiles of urban aerosol complex refractive index in the frame of ESQUIF airborne measurements, Atmos. Chem. Phys., 8, 901–919, 2008

**Raut**, J.-C., and Chazette, P.: Retrieval of aerosol complex refractive index from a synergy between lidar, sunphotometer and in situ measurements during LISAIR experiment, Atmos. Chem. Phys., 7, 2797–2815, 2007

Chazette, P., Gros, V., Pham, M., **Raut**, J.-C., Bonsang, B., Sanak, J., Tombette, M.: Synergy between lidar and in-situ gas and aerosol measurements in inner Paris: two case studies during the LISAIR campaign, Atmos. Chem. Phys., in preparation

Kim, S.-W., Berthier, S., **Raut**, J.-C., Chazette, P., Dulac, F., Yoon, S.-C.: Validation of aerosol and cloud layer structures from the space-borne lidar CALIOP using a ground-based lidar in Seoul, Korea, Atmos. Chem. Phys., 8, 3705–3720, 2008

Elias, T., Haeffelin, M., Drobinski, P., Gomes, L., Rangognio, J., Bergot, T., Chazette, P., **Raut**, J.-C., Coulomb, M.: Particulate contribution to extinction of visible radiation: pollution, haze, and fog, in preparation

Bergot, T., Haeffelin, M., Musson-Genon, L., Colomb, M., Boitel, C., Bouhours, G., Bourriane, T., Carrer, D., Challet, J., Chazette, P., Drobinski, P., Dupont, E., Dupont, J.-C., Elias, T., Fesquet, C., Garrouste, O., Gomes, L., Guerin, A., Lapouge, F., Lefranc, Y., Legain, D., Pietras, C., Plana-Fattori, A., Rangognio, J., **Raut**, J.-C., Remy, S., Romand, B., Zhang, X.: ParisFog : Des chercheurs dans le brouillard, La Météorologie, in press



## Annexe B

### Article de Raut et al. (2008a)

#### Link between aerosol optical, microphysical and chemical measurements in an underground railway station in Paris

J.-C. Raut<sup>1</sup>, P. Chazette<sup>1</sup>, and A. Fortain<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement, Laboratoire mixte CEA-CNRS-UVSQ, CEA Saclay, F-91191 Gif-sur-Yvette, France

<sup>2</sup>SNCF, Direction de l'Innovation et de la Recherche, Paris, France

#### Abstract

Measurements carried out in Paris Magenta railway station in April-May 2006 underlined a repeatable diurnal cycle of aerosol concentrations and optical properties. The average daytime  $PM_{10}$  and  $PM_{2.5}$  concentrations in such a confined space were approximately 5 to 30 times higher than those measured in Paris streets. Particles are mainly constituted of dust, with high concentrations of iron and other metals, but are also composed of black and organic carbon. Aerosol levels are linked to the rate at which rain and people pass through the station. Concentrations are also influenced by ambient air from the nearby streets through tunnel ventilation. During daytime approximately 70% of aerosol mass concentrations are governed by coarse absorbing particles with a low Angström exponent ( $\sim 0.8$ ) and a low single-scattering albedo ( $\sim 0.7$ ). The corresponding aerosol density is about  $2 \text{ g.cm}^{-3}$  and their complex refractive index at 355 nm is close to  $1.56 - 0.035i$ . The high absorption properties are linked to the significant proportion of iron oxides together with black carbon in braking systems. During the night, particles are mostly submicronic, thus presenting a greater Angström exponent ( $\sim 2$ ). The aerosol density is lower ( $1.8 \text{ g.cm}^{-3}$ ) and their complex refractive index presents a lower imaginary part ( $1.58 - 0.013i$ ), associated to a stronger single-scattering albedo ( $\sim 0.85 - 0.90$ ), mostly influenced by the ambient air. For the first time we have assessed the emission (deposition) rates in an underground station for  $PM_{10}$ ,  $PM_{2.5}$  and black carbon concentrations to be  $3314 \pm 781$  ( $-1164 \pm 160$ ),  $1186 \pm 358$  ( $-401 \pm 66$ ) and  $167 \pm 46$  ( $-25 \pm 9$ )  $\mu\text{g.m}^{-2}.\text{h}^{-1}$ , respectively.

**Keywords:** Subway; mass concentrations; chemical analyses; optical properties; emission rates.

#### 1. Introduction

Indoor particle pollution has recently become an important topic of air quality research area for its preponderant role in the evaluation of people exposure to air pollutants and its adverse health effects. It is particularly true for commuters in traffic, gathering high particle pollution level and long exposure duration to pollutants together (Gee and Raper, 1999; Chan et al., 2002). While for outdoor aerosol measurements large databases exist, only sparse data are available for the exposure of the users of public transportation systems to these particles, particularly inside underground railway stations. The underground portion of the subway system is a confined space that may permit concentration of contaminants either from the outside atmosphere or internal sources. Peak exposures of approximately 1 h, just over the typical time spent in a transport environment, may be more relevant from a health standpoint than the 24-h sampling times that the current standards apply to (Michaels, 1996; Michaels and Kleinman, 2000). Therefore, the knowledge of the properties of those small particles is of paramount importance (Fromme et al., 1998). Thus, several papers concerning the PM exposure in subway systems have been published recently and reviewed by Nieuwenhuijsen et al. (2007). In outdoor environment, particles are often characterized by their optical properties as the link between optical properties and particle concentrations is well established through the extinction cross-section. But, this point has never been treated in indoor environments. This paper presents a characterization of

the subway environment in Paris Magenta railway station in terms of optical and microphysical properties of aerosols. The particularity of the subway system environment in aerosol optical properties will be investigated as well as their relation to mass or chemical features. This can eventually allow developing a remote sensing survey of pollution in an underground environment

## 2. Experimental setup

In Paris, the subway system is the major transportation mode serving hundreds of thousands of people each day. The Magenta station, opened in July 1999, has four lines with two lines passing through the central tunnel and two lines separated on both sides of the station. The length of the station is 228 m, and is located at 28 m above mean sea level, i.e. 30 m below the level of the streets. The maximum capacity is at present ten millions commuters per year thanks to 339 trains per day. The measurement campaign was carried out on the central platform of the station, next to the tunnel entrance, from the 28 April to the 9 May 2006. This period was characterized by one week from the 2<sup>nd</sup> May to the 5<sup>th</sup> May comprised between two long week-ends 3-days long: 29<sup>th</sup> April to 1<sup>st</sup> May and 6<sup>th</sup> May to 8<sup>th</sup> May. Continuous measurements of inhalable particulate matter fraction (PM<sub>2.5</sub> and PM<sub>10</sub>), number size distribution, chemical composition, scattering and absorption properties were made in real time. The wavelength of 355 nm offers the opportunity to simulate lidar extinction signals (Raut and Chazette, 2007) and to use eye-safe active remote sensing instrument to monitor the air quality in an underground station. Atmospheric state parameters (pressure, temperature, relative humidity) were also monitored.

### 2.1 Mass concentration measurements

The particle measurements were performed using two automatic TEOM (Tapered Element Oscillating Microbalance, Rupprecht and Pataschnik) Model 1400 A instruments equipped with PM<sub>10</sub> and PM<sub>2.5</sub> inlets with a flow rate of 1 m<sup>3</sup>/h. The air is heated inside the instruments to 50°C in order to remove any water on the particles. Mass concentrations are obtained every minute with a maximum absolute uncertainty of 5 µg.m<sup>-3</sup>.

### 2.2 Particle sizer

The Electrical Low Pressure Impactor (ELPI) is a real-time particle size spectrometer designed at the Tampere University of Technology (Dekati, Ltd., <http://www.dekati.com/elpi.shtml>) for real-time monitoring of aerosol particle size distribution (Keskinen et al., 1992). The ELPI measures airborne particle size distribution from 0.028 to 10.03 µm within 12 channels every minute with a flow rate of 10 L/min. The accuracy on the aerosol number concentration measurement is about 5%.

### 2.3 Chemical measurements

We performed chemical analyses on 18 samples and one blank sample with a duration comprised between 4 and 24 hours. Aerosol samples devoted to carbonaceous analyses were collected at  $14.2 \pm 0.3 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$  on pre-cleaned Whatman GF/F glass-fiber filters with a diameter of 47 mm. The carbon mass was determined through a thermal protocol (Cachier et al. 1989). The precision of the results is estimated to be of the order of 10%. Whatman nuclepore membranes in polycarbonate with a diameter of 47 mm and a porosity of 0.4 and 8 µm were also mounted on stack filters unit. The cut-off diameter of ~2 µm corresponding to the separation between fine (PM<sub>2.5</sub>) and coarse (PM<sub>10</sub>-PM<sub>2.5</sub>) fractions depends on the pumped air speed (John et al., 1983), which was  $\sim 30.3 \pm 1.8 \text{ m}^3/\text{h}$ . Those filters were used for measuring the major water soluble (WS) inorganic cations (Na<sup>+</sup>, NH<sub>4</sub><sup>+</sup>, K<sup>+</sup>, Mg<sup>2+</sup>, Ca<sup>2+</sup>) and anions (Cl<sup>-</sup>, NO<sub>3</sub><sup>-</sup>, SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>) in the particle by ion chromatography (DIONEX DX600). The sensitivity of ionic analyses is ~0.1 ppb and blank concentrations are lower than 30 ppb for each species. The precision on ion chromatography analysis has been evaluated to be 5-10% (Chazette and Liousse, 2001; Randriamiarisoa, 2006). Gravimetric measurements have been carried out by a Sartorius microbalance (model MC21S, precision of 1 µg) on the granite table equipped with shock absorbers in a shelter at the regulated temperature of 20°C and relative humidity lower than 10 %. The standard deviation on a gravimetric measurement is lower than 10 µg, representing less than 5 % of particle mass (Sciare et al., 2005).

The major aerosol components are black carbon, particulate organic matter (POM), WS fraction, dust and sea salts. The conversion calcium-dust factor is obtained from a linear regression between the calcium mass of the fine or coarse fraction of the aerosol and the mass difference in the same fraction between the gravimetric measurement and the sum of all chemically analyzed components (except calcium). An organic carbon / POM conversion factor close to 1.4 for urban aerosol is determined by previous studies (e.g. Turpin and Lim, 2001) and is a posteriori validated by a satisfying chemical closure. In this study we found a calcium-dust conversion factor close to 28 for the fine fraction and close to 45 for the coarse fraction of the aerosol. WS is composed of Nitrate, non sea-salt sulfate and ammonium. Sea salts are composed of Cl<sup>-</sup>, Na<sup>+</sup>, sea-salt SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>, sea-salt K<sup>+</sup>, Mg<sup>2+</sup> and sea-salt Ca<sup>2+</sup>. Four samples were also analysed using computer-controlled scanning electron microscopy and energy dispersive X-ray detection so as to qualitatively detail the main elementary components of the dust part of aerosols and assess their origin in the station. Density values have been roughly calculated as a volume weighed average density of the major aerosol components (Chazette and Liousse, 2001) determined from chemical analysis of the filters.

## 2.4 Nephelometer

A three-wavelength (450, 550 and 700 nm) nephelometer (manufactured by TSI®) Model 3563 was used to measure the aerosol scattering coefficient of particles with a diameter larger than 0.05  $\mu\text{m}$  in a 7-170° range of scattering angle (e.g. Bodhaine et al., 1991; Chazette et al., 2005) every minute at a flow rate of 20 L/min. To take into account the non-observed scattering angles, a correction factor has been assessed, from Mie computations, to be close to 1.3 for underground aerosols. This assessment was done using the retrieved aerosol mean size number distribution and the mean complex refractive index during the campaign. The nephelometer heats air in the instrument, which may lead to partial or complete evaporation of any water present around the aerosols. However, since the ambient relative humidity was very low in the station (lower than 60%), thus below the deliquescence point, it is unlikely that aerosols contained much water. Relative uncertainty on the measurements is close to 5%. The scattering coefficient of the nephelometer has been spectrally interpolated at 355 nm using the Angström exponent derived from the 450 nm and 700 nm channels (Angström, 1964).

## 2.5 Aethalometer

The aethalometer instrument Model AE-31 (manufactured by Magee Scientific Company) permitted the assessment of black carbon concentration (BC) at nine wavelengths from 370 to 950 nm within an average time of 2 minutes at a flow rate of 5 L/min. The atmospheric samplings were performed through a PM<sub>10</sub> inlet head. The instrument is sensitive to the light absorbent part of the aerosols (Hansen and Novakov, 1990). Maximum relative uncertainty on the BC measurements performed with this instrument is close to 10% (Chazette et al., 2003). According to Bond et al. (1999), the instrument is found to interpret about 2% of the scattering as absorption; such a correction has been taken into account in this paper and will be described in Sect. 3.

## 2.6 Meteorological parameters

A Vaisala meteorological probe type PTU200 was used to measure the temperature (with an uncertainty of  $\sim 0.1$  K), the relative humidity ( $\sim 1\%$ ), and the atmospheric pressure ( $\sim 1$ hPa).

## 3. Coherence of the measurements

### 3.1 Mass concentration

PM<sub>10</sub> and PM<sub>2.5</sub> measurements by the TEOM have been compared to the measurements of the filter analyses. Results are given in Fig. 1. A good agreement is found between TEOM and filter measurements with a satisfying correlation coefficient of 0.95-0.96 (0.81-0.89) for PM<sub>10</sub> (PM<sub>2.5</sub>, respectively). The small discrepancies are mainly ascribed to the sampling periods of the

chemical analyses varying from 4 hours to 24 hours, which sometimes average nighttimes with daytime observations. The high variability in mass concentrations reported by the TEOM and described in the following can therefore be smoothed during filter sampling.

### 3.2 Absorption coefficient

The calibration of the aethalometer on chemical filters has been carried out for BC concentrations spectrally averaged between 370 to 950 nm. Absorption measurements were not available after 4 May due to deficiencies in the rolling tape. According to Fig. 2, the calibration coefficient is  $\eta_{\text{abs}} \sim 1.67$ . This is mainly due to errors in filter exposure area, air flow rate, over-reading of absorption in the UV domain, the influence of scattering by aerosols collected on the filter, and multiple scattering within the filter. A significant proportion of iron oxides characterizing aerosols in railway stations (e.g. Birenzve, 2003) can also contribute to errors in the interpretation of absorption, mainly in the UV domain. The aerosol absorption coefficient  $\alpha_{\text{abs}}$ , inferred from loss of transmission of light through the filter can thus be calculated as follows:

$$\alpha_{\text{abs}} = \frac{\Delta\tau \cdot A}{\eta_{\text{abs}} \cdot F \cdot T} \quad (1)$$

Where  $\Delta\tau$  is the difference of optical attenuation due to aerosol deposit on filter during the sampling time base period  $T$  ( $\sim 2$  min) with a flow rate of air through the filter of  $F \sim 5$  L/min.  $A$  is the aerosol collecting spot area of filter ( $A \sim 0.5$  cm<sup>2</sup>).

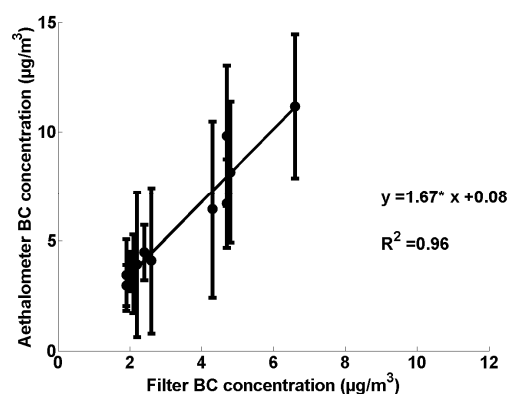


Figure 2: Same as Figure 1 for the correlation between black carbon concentrations measured by the aethalometer and retrieved from chemical analyses.

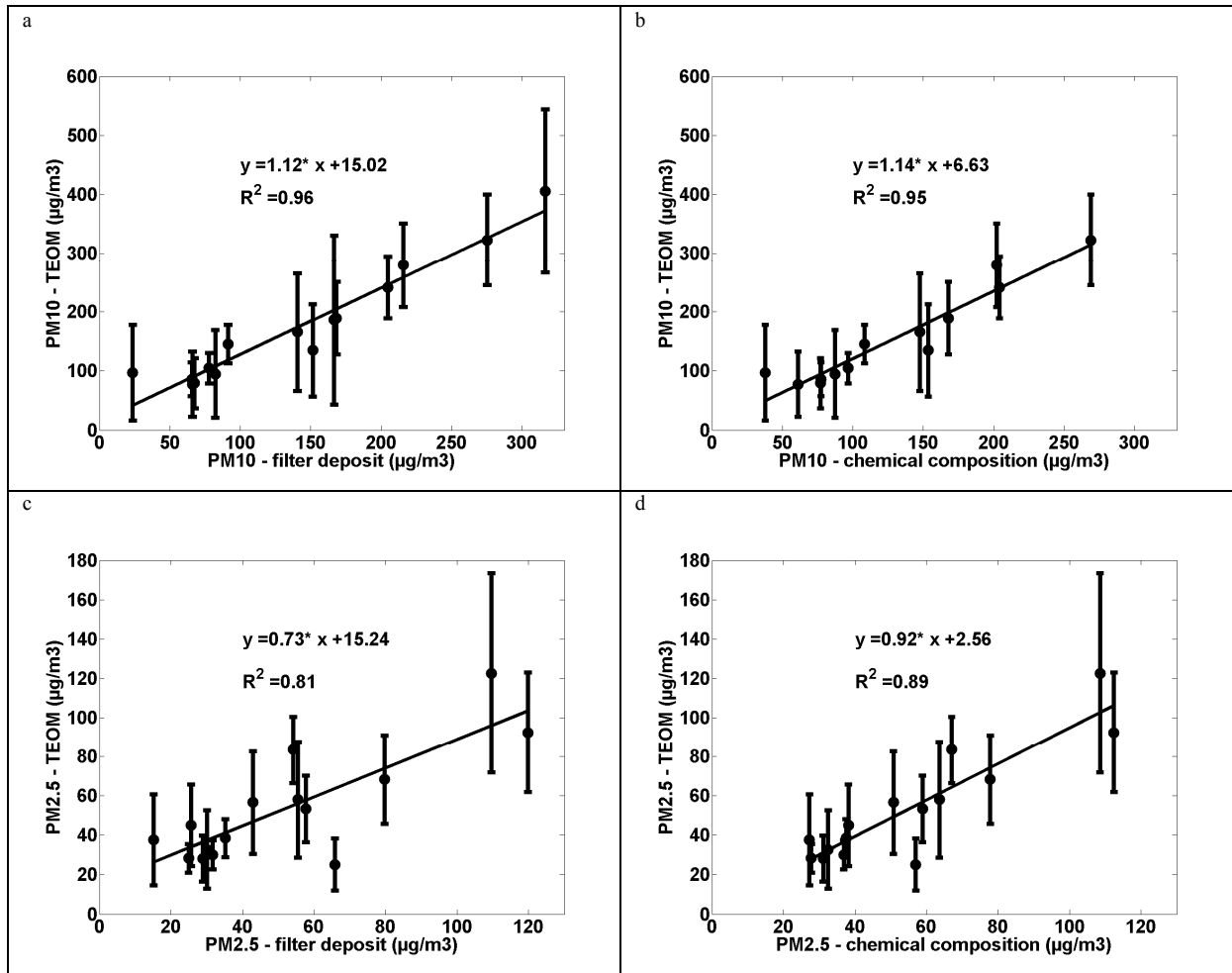


Figure 1: Correlations between PM<sub>10</sub> (a and b) and PM<sub>2.5</sub> (c and d) mass concentrations measured by the TEOM and deposited on the filters (a and c) or calculated from chemical composition (b and d). Vertical bars correspond to the standard deviations of TEOM data in the sampling periods of filter measurements. The equation of the least mean squares linear regression and the fitting correlation coefficient ( $R$ ) are also given.

## 4. Observations

### 4.1 Temporal evolution

PM<sub>2.5</sub> and PM<sub>10</sub> concentrations and scattering and absorption coefficients at 355 nm were monitored in the subway station and plotted versus the train traffic intensity on Figs. 3a and 4. Both figures clearly show different diurnal cycle patterns between weekdays and week-end periods. Mean concentrations are reported in Table 1. During weekdays, the regular bimodal pattern of train traffic with two rush periods (~320 and 100 µg/m<sup>3</sup> for PM<sub>10</sub> and PM<sub>2.5</sub>, respectively) and minimum levels during the night is mirrored by the particle concentration. The concentrations closely follow traffic intensity but with a lag by about half an hour to an hour, as already noted by Birenzve et al. (2003) in Washington subway system. On Fig. 3a the shape of this daily total particle concentration pattern and the timing of the diurnal cycle are remarkably consistent from one day to the next, although day-to-day fluctuations in PM concentration

levels are observed. During week-ends, the concentrations in the station also follow the train traffic intensity and remain almost constant during daytime (~120 and 35 µg/m<sup>3</sup> for PM<sub>10</sub> and PM<sub>2.5</sub>, respectively). Daily variability is observed but significant differences characterize the traffic between working days and week-ends (Table 1). It is worth noting that, contrary to the results of Birenzve et al. (2003) in Washington, the train frequency observed on week-ends and in the middle of the day on weekdays (~40 trains per hour) does not result in a similar particle concentration (a factor 2 is observed). It is likely because the time required for the particles to settle after rush hours is higher than the time separating two train passages but it could be also due to the displacement of more passengers during weekdays on the station platform. These results highlight the influence of particulate dispersion by resuspension due to the traffic intensity and an increasing number of passengers.

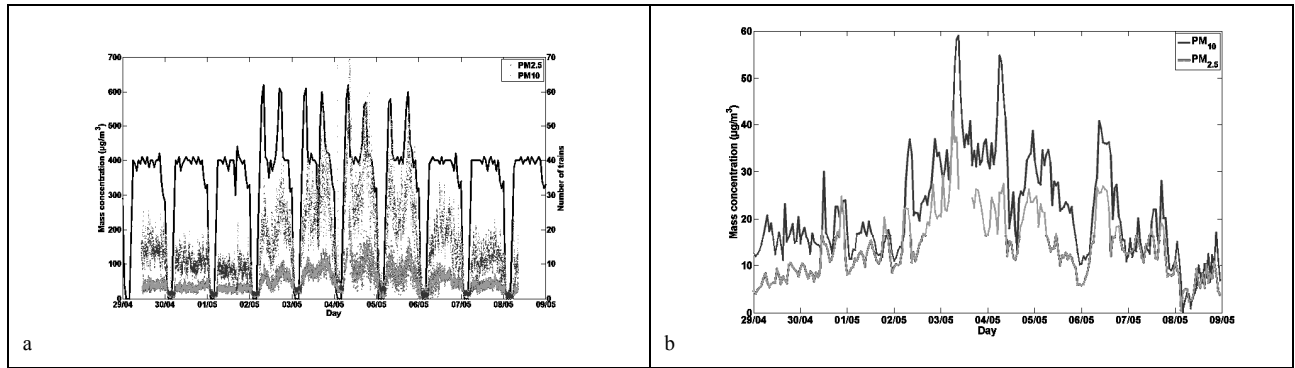


Figure 3: Times series of PM<sub>2.5</sub> (light grey) and PM<sub>10</sub> (dark grey) concentrations together with hourly traffic intensity in Magenta station (black) (a) and temporal evolution of outdoor PM<sub>2.5</sub> and PM<sub>10</sub> concentrations during the campaign (b).

Thus, due to different patterns between weekdays and week-ends, stabilization time after rush hours and variable number of passengers, the correlation coefficient between PM concentrations and traffic intensity is poor ( $R^2 \sim 0.65$ ), although the clear, repeatable daily particle concentration pattern is mainly driven by train traffic frequency.

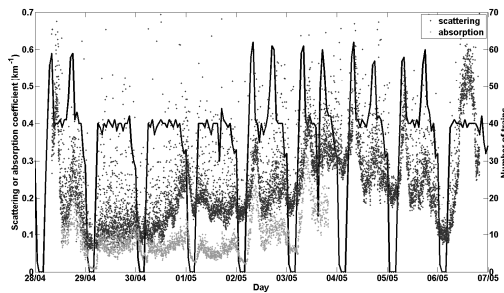


Figure 4: Times series of absorption (light grey) and scattering (dark grey) coefficients together with hourly traffic intensity in Magenta station (black).

In normal hours the absorption coefficient shown in Fig. 4 is  $\sim 0.08 \text{ km}^{-1}$  and reaches  $0.30 \text{ km}^{-1}$  in the peak of rush hours. The scattering coefficient follows the same daily cycle with a higher variability. The fact that the levels of aerosol scattering coefficient do not significantly decrease may be due to cleaning activities during the night. The temperature inside the measurement chamber is indeed lower in nephelometer ( $25^\circ\text{C}$ ) than in TEOM ( $50^\circ\text{C}$ ).

Table 1. PM concentrations measured by the TEOM given during different periods: nighttime includes 02:00 to 05:00 LT, rush hours are from 07:00 to 10:00 LT and from 15:00 to 21:00 LT. All other periods are called “normal hours”. The number of samples of each period during weekdays and week-ends is given between parentheses.

		Weekdays	Week-ends
Nighttime	PM <sub>10</sub>	$28 \pm 13$	$13 \pm 6$
Nighttime	PM <sub>2.5</sub>	$21 \pm 9$ (703)	$12 \pm 5$ (900)
Normal hours	PM <sub>10</sub>	$200 \pm 96$	$111 \pm 55$
Normal hours	PM <sub>2.5</sub>	$61 \pm 26$ (2880)	$35 \pm 16$ (4165)
Rush hours	PM <sub>10</sub>	$320 \pm 107$	$127 \pm 46$
Rush hours	PM <sub>2.5</sub>	$93 \pm 34$ (2160)	$39 \pm 14$ (3060)

#### 4.2 Influence of outdoor environment

Another remarkable feature is the bell-shaped pattern in particle concentrations and optical properties in the considered period. Outdoor concentrations also follow the bell-shape for PM<sub>2.5</sub> and PM<sub>10</sub>, as shown on Fig 3b. In April and May, ventilation air is taken through a mechanical ventilation system from the street towards the subway station. Magenta station tunnel is moreover located only a few hundred meters from the ambient air. Outdoor pollutants can therefore easily diffuse into the indoor environment, acting as a confined space that permits contaminants concentration. However, such an increase in concentrations by  $\sim 20 \mu\text{g.m}^{-3}$  can hardly explain the high discrepancies observed on weekdays ( $\sim 100 \mu\text{g.m}^{-3}$ ) since outdoor particles are mainly small urban aerosols that weakly influence concentrations. That may be due to an evolution of wind speed in the station during the week. The temporal evolution of air velocity has been studied but did not present any bell-shape structure. Finally, the temporal evolution of outdoor concentrations can explain the bell-shaped structure observed at nighttime periods but not at daytime. The pronounced bell-shaped structure observed during the day may be related to an accumulation of outdoor concentrations in the station but also to a change in the ventilation flow rate. An evolution of wind speed in the lowest layers can raise particles outside the station and might lead to airstreams in the station entrance.

### 4.3 PM<sub>2.5</sub>/PM<sub>10</sub> ratio

The PM<sub>2.5</sub>/PM<sub>10</sub> ratio has been plotted on Fig. 5, together with the train frequencies. During daytime, the PM<sub>2.5</sub> concentrations account for about 30 % of the PM<sub>10</sub> and such a fairly constant ratio indicates the same regular time variation of PM<sub>2.5</sub> as PM<sub>10</sub>. During the night, a high variability is observed and PM<sub>2.5</sub>/PM<sub>10</sub> ratio can reach 1. The high fine particle fraction of total PM<sub>10</sub> indicates a significant contribution from the aerosol settling processes after the last train. Fig. 5 also highlights the presence of the same type of particles during normal and rush hours since traffic intensity peaks do not have any influence on the PM<sub>2.5</sub>/PM<sub>10</sub> ratio.

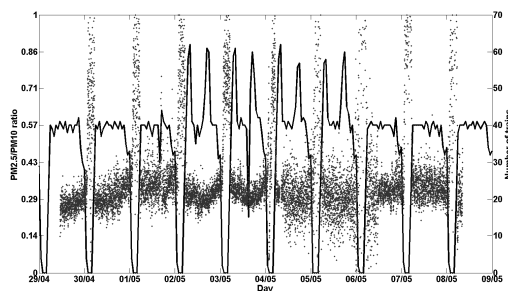


Figure 5: Times series of PM<sub>2.5</sub>/PM<sub>10</sub> ratio (grey) concentration together with hourly traffic intensity in Magenta station (black)).

When number concentrations are used instead of mass measurements, daytime and nighttime discrepancies are not obvious, the ratio in number concentrations being close to 1. This suggests that most particles are submicronic in the railway station, but a small number of coarse dust particles raised by the trains are governing mass concentration during traffic activity. As shown in Fig. 6, the normalized size distributions are almost similar for diurnal or nocturnal conditions, the main discrepancies being observed for the larger particles. The average daytime particle number concentrations (7000 cm<sup>-3</sup>) were greater than in nocturnal conditions (4000 cm<sup>-3</sup>), and peak levels can reach 20000 particles per cm<sup>3</sup>.

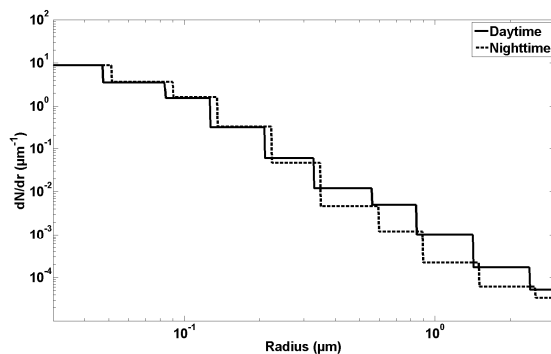


Figure 6: Normalized number size distribution obtained in averaging all ELPI measurements in both daytime (solid line) and nighttime (dashed line) periods.

### 4.4 Chemical analyses

Fig. 7 represents the average elemental composition of aerosols measured from filter analyses during the campaign. Within traffic conditions, fine particles contributing to PM<sub>2.5</sub> are mainly constituted of POM (30 µg/m<sup>3</sup>) and dust (30 µg/m<sup>3</sup>). This proportion of dust is greater than in outside atmosphere over Paris (e.g. Randriamiarisoa et al., 2006). The WS fraction and BC concentration are both about 5 µg/m<sup>3</sup>. Coarse particles are mainly constituted of dust raised by the trains, by about 95 µg/m<sup>3</sup>. Spectrometry analyses and micro-fluorescence by X-rays have revealed the presence of barite (BaSO<sub>4</sub>) and gypsum (CaSO<sub>4</sub>) for the largest particles. But the most common element in dust samples was iron and iron oxides (Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> and Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>). Other enriched elements included Al, Mn, Si, Cr, Cu, Zn and Sn. The most probable sources for metals in the subway system are the wear of steel due to the friction at wheel–rail interface, the vaporization of metal from sparking (Pfeifer et al., 1999), the brakes (Sitzmann et al., 1999), the current collector, and the conductor rail (Aarnio et al., 2005). The electrical contact of the train is one of principal sources for particles (C, Cu) in the subway station. The possible sources for mineral particles are ambient air, ballast, and engineering and construction works in the tunnels and stations (Aarnio et al., 2005).

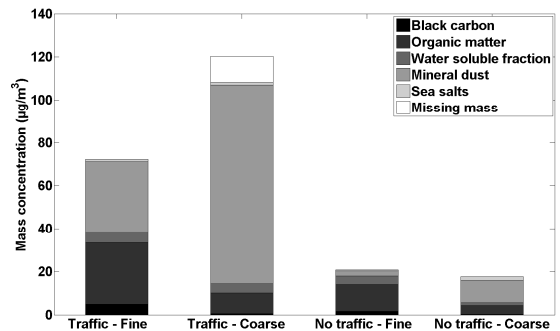


Figure 7: Mass chemical apportionment of fine (<2.5 µm) and coarse (>2.5 µm) particles during periods with or without traffic.

During nighttime, concentrations are obviously lower. Fine particles are mainly composed by carbonaceous constituents (BC by 2 µg/m<sup>3</sup>, and POM by 10 µg/m<sup>3</sup>) and coarse particles naturally present a predominant proportion of dust. BC content is of same order as that measured in Paris streets (Raut and Chazette, 2007). This result indicates the role of ambient outside air in the composition of the underground atmosphere.

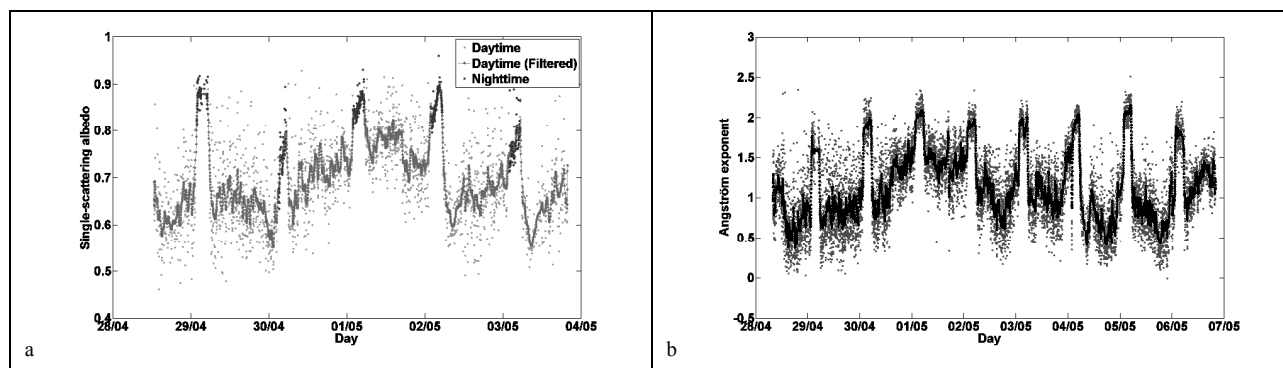


Figure 8: Time series of  $\omega_0$  at 355 nm (a) and scattering Angström exponent between 450 and 700 nm (b) during the campaign. In (b), raw data are plotted in grey and filtered data in black.

However mass concentration levels are several times higher in the underground as compared to the street and high concentrations of BC were reported during train traffic periods. Outdoor sources cannot be the major source for particulate matter in the underground during traffic. Thus some additional sources generate indoor particles that have been described above. Large contents of BC can be due to the degradation of carbonaceous elements in brakes beyond 600 °C.

#### 4.5 Comparison to other studies

Exposure concentrations reported in Magenta station are not necessarily transferable to different underground stations owing to different geographical locations, sources and travel conditions. Substantial variation might be expected due to different ventilation and variations in the number of train passages. Notwithstanding, the studies are broadly consistent in terms of raised concentrations above fixed point monitoring pollutant concentrations. The daily pattern of particulate matter concentrations with two maxima during weekdays and an almost constant value during week-ends has already been observed by other authors, e.g. in Wahington (Birenzvige et al., 2003) or in Stockholm (Johansson and Johansson, 2003). It is clear that  $PM_{10}$  and  $PM_{2.5}$  have much higher values (with a factor 5 to 30) compared with the outside air ( $\sim 20\text{-}30 \mu\text{g}/\text{m}^3$ , Fig. 3b). Magenta railway station is relatively new (1999) and concentrations are expected to be lower than in several short measurement campaigns carried out in the previously monitored and reported underground systems. Mean mass concentrations measured at Magenta station are on the same order than those measured by Aarnio et al. (2005) in Helsinki ( $47\text{-}60 \mu\text{g}/\text{m}^3$  for  $PM_{2.5}$ ) and by Chillrud et al. (2004) in New-York, but exhibit lower values than observed by Johansson and Johansson (2003) in Rome ( $354 \mu\text{g}/\text{m}^3$  for  $PM_{10}$ ), Ripanucci et al. (2006) in Stockholm ( $470 \mu\text{g}/\text{m}^3$  for  $PM_{10}$  and  $260 \mu\text{g}/\text{m}^3$  for  $PM_{2.5}$  during weekdays between 7 a.m. to 7 p.m.) or Adams et al. (2001) in London ( $157\text{-}247 \mu\text{g}/\text{m}^3$  for  $PM_{2.5}$  between 1999 and 2000).

BC values are only a bit larger than in outside air. In traffic conditions, the aerosol are mainly composed of mineral and metallic particles. The presence of significant BC concentrations can be related to the heating of brake coatings when trains are stopping. High levels of BC have also been reported in Helsinki by Aarnio et al. (2005) ( $6.3 \pm 1.8 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ) or by Fromme et al. (1998) in Berlin ( $6.9\text{-}10.9 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ). It is known that the composition of particles is composed primarily of iron (Birenzvige et al., 2003; Sitzmann et al., 1999). The predominant presence of Fe had already been noticed by Chillrud et al. (2004) and Aarnio et al. (2005). High levels of Mn were also reported in London and New-York (Pfeifer et al., 1999; Chillrud et al., 2004). Other metallic enriched elements including Cr, Ni, Si, Al, Cu, Sn, Ag, and Sb were also mentioned (Nieuwenhuijsen et al., 2007).

### 5. Optical properties of underground aerosols

#### 5.1 Single-scattering albedo and Angström exponent

Absorption  $\alpha_{abs}$  and scattering  $\alpha_{scat}$  coefficients have been combined to deduce the single-scattering albedo  $\omega_0$  at 355 nm:

$$\omega_0 = \frac{\alpha_{scat}}{\alpha_{scat} + \alpha_{abs}} \quad (2)$$

The temporal evolution of  $\omega_0$  is given in Fig. 8a from 28 April to 4 May. During the night  $\omega_0$  values are high (0.8 – 0.9), similarly to particles in the outdoor air (Raut and Chazette, 2007). In daytime conditions, the values are very dispersed, with a mean value of  $0.70 \pm 0.06$ , indicated a higher level of absorption. The corresponding density is larger ( $2 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ ) than during nighttime ( $1.8 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ ).

Time series of the Angström exponent  $a$  retrieved from nephelometer measurements between 450 and 700 nm is quite similar (Fig. 8b).  $a$  is indeed between 0.5 and 1 in daytime and reaches 2 during the night. It is in agreement with the

$PM_{2.5}/PM_{10}$  ratio that showed low values when traffic was intense, remaining the presence of coarse particles. In the night aerosols are mainly composed of  $PM_{2.5}$  and the corresponding  $a$  is higher. A good correlation can be obtained between  $\omega_0$  and  $a$  values, as shown in Fig. 9. The  $R^2$  coefficient is  $\sim 0.77$ , suggesting that  $a$  can be utilized to retrieve  $\omega_0$  after 5 May with a satisfying accuracy.

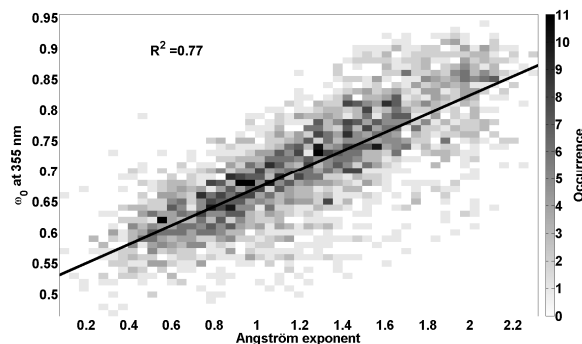


Figure 9: Correlation between Angström exponent and  $\omega_0$  during the campaign. The white curve represents the linear regression  $y=0.15x+0.52$  in the least square sense with a correlation coefficient of  $R^2 \sim 0.77$ .

The relation between  $\omega_0$  and  $a$  has rarely been investigated in previous studies. Anderson et al. (2003) and He et al. (2006) showed an anti-correlation between  $a$  and the aerosol extinction-to-backscatter ratio, which is the product of the aerosol backscatter phase function by  $\omega_0$ , contrary to the results of Ansmann et al. (2001). However those results are highly dependent on the type of aerosols, relative humidity and size distribution governing the phase function. During AMMA campaign in Niger, Johnson et al. (2008) stated that  $\omega_0$  of a dust and biomass-burning aerosol mixture generally increased with decreasing  $a$  as low  $a$  were indicative of a high dust proportion, and the dust was less absorbing than the biomass-burning aerosol. In this study, opposite results are observed: coarse particles with low Angström exponent raised by train passages are associated with a small  $\omega_0$ , suggesting a higher absorption than that encountered for fine particles. It can be due to both the presence of absorbing iron oxides and the internally generated BC from the degradation of carbonaceous brake components (Sect. 4.4). Hence, the metallic composition of dust revealed by spectrometry analyses and micro-fluorescence by X-rays can explain a higher density and absorption of underground aerosols in comparison with particles from outdoor pollution.

## 5.2 Aerosol complex refractive index

### 5.2.1 Retrieval method

The knowledge of the scattering and absorption properties of individual particles is not straightforward since aerosol

concentrations increase and decrease with traffic intensity together with  $\alpha_{abs}$  and  $\alpha_{scat}$  (Sect. 4.1). A more judicious parameter is the aerosol complex refractive index (ACRI). The determination of both real and imaginary parts requires two constraints. We have used  $\alpha_{scat}$  and  $\omega_0$  at 355 nm as constraints. The principle of the retrieval method has already been described in Raut and Chazette (2007). Here, the methodology is quite similar but has been improved enabling both the real and the imaginary parts of ACRI to be derived in the same step. Two look-up tables are built from a Mie model using the size distribution measured by the ELPI. A set of realistic ACRI values are used; real part are assumed to vary from 1.45 to 1.65 and imaginary parts are assumed to vary from  $10^{-3}$  to 0.1. One of the look-up tables contains values of  $\alpha_{scat}$  and the second one contains values of  $\omega_0$ . The solution is a unique ACRI value that provides the same  $\alpha_{scat}$  as that derived from nephelometer measurements at 355 nm, and the same  $\omega_0$  as the one retrieved in Sect. 5.1 from aethalometer and nephelometer measurements. Note that the imaginary part of ACRI is mainly driven by  $\omega_0$ , whereas  $\alpha_{scat}$  is more sensitive to the real part.

### 5.2.2 Results

Table 2 summarizes the ACRI values obtained from average size distribution, scattering  $\alpha_{scat}$  and  $\omega_0$  during nighttime (01:50 to 05:20 LT) and daytime. Uncertainties on the real and imaginary parts of the ACRI have been determined using a Monte-Carlo approach thanks to 200 Gaussian random realizations around the statistical variability of size distribution,  $\omega_0$  and  $\alpha_{scat}$ . The differences in the real part between periods with traffic (1.56) and without traffic (1.58) are not significant as the uncertainties are  $\sim 0.05$ . Nevertheless, the error bars on the imaginary part do not overlap, suggesting significant differences. During daytime the imaginary part is three times larger ( $0.035 \pm 0.005$ ) than during the night due to a huge amount of absorbing coarse particles (mainly composed of dust with iron oxides). During nighttime, the value  $0.013 \pm 0.002$  is in accordance with values reported by Raut and Chazette (2008) over Paris area at 532 nm:  $0.017(\pm 0.003)$ , reminding the strong influence of outside air in the subway station when traffic stops.



Table 2. ACRI retrieved in this study from a synergy between size distribution, scattering coefficient and single-scattering albedo values (together with their uncertainties between brackets), or from chemical analyses corresponding to underground activity with and without traffic.

Traffic	ACRI from synergy	Volume-linear rule	Lorentz-Lorenz formula
With	1.56 ( $\pm 0.05$ ) – 0.035 ( $\pm 0.005$ ) i	1.53 – 0.033 i	1.53 – 0.025 i
Without	1.58 ( $\pm 0.05$ ) – 0.013 ( $\pm 0.002$ ) i	1.55 – 0.043 i	1.56 – 0.032 i

### 5.2.3 Comparison to chemical observations

Assuming that particles are homogeneously internally mixed, two chemical approaches can be used. The first one is a simple volume-linear internal mixing rule of the aerosol chemical constituents (Seinfeld and Pandis, 1998) under the hypothesis that each component  $i$  contributes to scattering and absorption according to its volume fraction  $f_i$ , as:

$$n = \sum_i f_i \cdot n_i \quad (3)$$

where  $n$  is the calculated ACRI for the particle and  $n_i$  the refractive index of each of the chemical compounds,. The sum of all the  $f_i$  is 1.

The second one comes from electromagnetic theory (Lorentz, 1880; Lorenz, 1880):

$$\frac{n^2 - 1}{n^2 + 2} = \sum_i \frac{n_i^2 - 1}{n_i^2 + 2} \cdot f_i \quad (4)$$

Values retrieved from these two methods have been gathered in Table 2. All cases show a slightly higher real part without traffic than with traffic conditions. Real parts are slightly lower than in ACRI retrieved from optical measurements. This can be linked to the hypothesis of homogeneous internal mixture of dust with carbonaceous aerosols (Raut and Chazette, 2008). The variability in the imaginary parts is more important. During traffic, a good agreement was obtained between the optical (0.035) and volume-linear rule (0.033) approaches. Using Lorentz-Lorenz formula the imaginary parts are found lower (0.025). It may be due to an underestimation of dust absorption, with an imaginary part of 0.01 taken from Chazette and Liousse (2001), while iron oxides found in the underground probably require a higher value. Moreover, the commonly used volume-mean rule for refractive index described by Eq. 3 generally work only for quasi-homogeneous mixture where refractive indices of each component are similar.

Notwithstanding, the main discrepancies in the imaginary parts are observed without traffic. Both chemical and electromagnetic

approaches overestimate soot absorption by factors larger than 2 and 3 for Lorentz-Lorenz and volume-linear rule, respectively. Although BC may be internally-mixed with other components in a particle, BC cannot be well-mixed since soot is irregularly shaped and solid (Katrinak et al., 1993). When aerosol refractive indices are volume-averaged, the particles containing soot are assumed to be more absorbent since all waves passing through the particle have potential to be absorbed. That explains the overestimation in the role of soot and thus in imaginary part values.

### 6. Emission and settling rates in Magenta station

The main source of particulate matter in the underground station is the resuspension at every train passage. After the last train runs, concentrations monotonically decline to reach an absolute minimum at about 02:00 LT. Resuspension and settling processes can be quantified by the rates of particles raised by one train (positive emission rate  $F_X^e$ ) or drifted after train passages (negative settling rate  $F_X^d$ ). Assuming that the particles are emitted evenly from the total floor area (12084 m<sup>2</sup>) of the station:

$$F_X^j = \frac{\Delta X^j \cdot H}{\Delta t^j} \quad (5)$$

where X stands for PM<sub>10</sub>, PM<sub>2.5</sub> or BC.  $\Delta X^j$  ( $j = e$  (d)) is the difference between the nocturnal mass concentration (the concentration before the last train passage) and that raised (drifted) by the first (last) train during the time  $\Delta t^{e(d)}$ , which is about 10 min.  $\Delta X^j$  is the mass concentration difference calculated in the time interval  $\Delta t^j$ .  $H$  is the mean height of Magenta station (~7 m).

Table 3. Emission and settling rates of PM<sub>10</sub>, PM<sub>2.5</sub> and black carbon (BC) expressed in  $\mu\text{g.m}^{-2}.\text{h}^{-1}$  determined after the first or the last train runs, respectively. Missing values correspond to noisy cases for PM<sub>10</sub> and PM<sub>2.5</sub>.

	$F_{PM_{10}}^e$	$F_{PM_{2.5}}^e$	$F_{BC}^e$	$F_{PM_{10}}^d$	$F_{PM_{2.5}}^d$	$F_{BC}^d$
Night of 28/04 – 29/04	-	-	188	-	-	-37
Night of 29/04 – 30/04	2453	1666	226	-1117	-415	-31
Night of 30/04 – 01/05	3500	1386	142	-937	-280	-19
Night of 01/05 – 02/05	2751	753	104	-925	-389	-14
Night of 02/05 – 03/05	3861	1086	175	-1289	-472	-25
Night of 03/05 – 04/05	3174	1397	-	-	-	-
Night of 04/05 – 05/05	4849	-	-	-1190	-	-
Night of 05/05 – 06/05	3318	-	-	-1220	-	-
Night of 06/05 – 07/05	2604	827	-	-1270	-431	-
Night of 07/05 – 08/05	-	-	-	-1361	-422	-
Mean Value	3314	1186	167	-1164	-401	-25
Standard deviation	781	358	46	-160	-66	-9

Table 3 summarizes the emission and settling rates of PM<sub>10</sub>, PM<sub>2.5</sub> and BC determined after the first or the last train runs, respectively. We found  $F_{PM_{10}}^e \sim 3314 \pm 781 \mu\text{g.m}^{-2}.\text{h}^{-1}$  and  $F_{PM_{2.5}}^e \sim 1186 \pm 358 \mu\text{g.m}^{-2}.\text{h}^{-1}$  that are three times larger than  $F_{PM_{10}}^d \sim -1164 \pm 160 \mu\text{g.m}^{-2}.\text{h}^{-1}$  and  $F_{PM_{2.5}}^d \sim -401 \pm 66 \mu\text{g.m}^{-2}.\text{h}^{-1}$  respectively. Due to accumulation processes in such a confined place, a series of numerous trains in intense traffic will therefore lead to huge emission rates and hence significantly increase the aerosol mass concentrations. Emission levels registered are higher than values reported for PM<sub>10</sub> in Paris: 1800-2900  $\mu\text{g.m}^{-2}.\text{h}^{-1}$  (www.airparif.fr). Even though those values do not apply to the same activity, they may serve as guidelines for comparison. Particles need a larger time to precipitate, explaining the delay of 45 minutes to one hour between the last train passage and the absolute minimum of concentration reached in the station during the night. BC emission rate, which is  $F_{BC}^e \sim 167 \pm 46 \mu\text{g.m}^{-2}.\text{h}^{-1}$ , is lower than that given in Paris (250-430  $\mu\text{g.m}^{-2}.\text{h}^{-1}$ , www.airparif.fr). This is not surprising given that this latter is directly caused by vehicle exhausts, which are a more important source of BC. The settling rate  $F_{BC}^d \sim -25 \pm 9 \mu\text{g.m}^{-2}.\text{h}^{-1}$  is  $\sim 6$  times lower than the emission rate and could be compared to the similar factor for PM<sub>10</sub> and PM<sub>2.5</sub> that is close to 3. Such a difference is due to the fact that the BC is mainly present on the submicron aerosols whose settling process is slower.

## 7. Conclusion

Aerosol concentrations and optical properties in Paris Magenta station display a repeatable diurnal cycle during weekdays characterized by two sharp peaks during traffic condition. Both lower levels of particle concentrations and a less marked cycle are observed during week-ends and nights. The average daytime PM<sub>10</sub> and PM<sub>2.5</sub> concentrations are approximately 5 to 30 times higher than those measured in Paris air quality monitoring site but lower than those measured in previous campaigns in subway systems. During daytime (traffic), aerosol is a complex mixture of compounds characterized by high concentrations of iron and other metals. Approximately 70% of mass concentrations are governed by coarse particles with a low Angström exponent ( $a \sim 0.8$ ) and a low single scattering albedo ( $\omega_0 \sim 0.7$ ). The importance of emission and settling rates underlines the dominant role of resuspension processes in the concentrations levels. Particles are mainly brought by the numerous trains travelling in the underground subway system and by passengers in transit. The high absorption properties are linked to the significant proportion of iron oxides together with the production of black carbon in braking systems. During the night, particles are mostly submicronic, thus presenting a greater Angström exponent ( $a \sim 2$ ). Similar chemical and optical properties as in outside air are remarked, illustrating the role of ventilation processes bringing air from the nearby streets into the subway station. This study has underlined that optical properties clearly followed concentration patterns in the station and permitted to precisely characterize variations in PM compositions. Those results relating mass to optics are a first step to monitor the spatiotemporal distribution of aerosols in terms of concentrations through a remote sensing approach in the subway environment.

## Acknowledgments

The authors thank Jean Sciare and Eric Robin (LSCE) for their help in the aerosol chemistry analyses.

## References

- Aarnio, P., Yli-Tuomi, T., Kousa, A., Mäkelä, T., Hirsikko, A., Hämeri, K., Räisänen, M., Hillamo, R., Koskentalo, T., Jantunen, M., 2005. The concentration and composition of and exposure to fine particles (PM<sub>2.5</sub>) in the Helsinki subway system, *Atmospheric Environment*, 39, 5059–5066.
- Adams, H.S., Nieuwenhuijsen, M.J., Colvile, R.N., McMullen, M.A.S., Khandelwal, P., 2001. Fine particles (PM<sub>2.5</sub>) personal exposure levels in transport microenvironments, London, UK, *The Science of the Total Environment*, 279, 29–44.
- Anderson, T. L., Masonis, S. J., Covert, D. S., Ahlquist, N. C., Howell, S. G., Clarke, A. D., McNaughton, C. S., 2003. Variability of aerosol optical properties derived from in situ aircraft measurements during ACE-Asia, *J. Geophys. Res.*, 108(D23), 8647, doi:10.1029/2002jd003247.
- Angström, A., 1964. The parameters of atmospheric turbidity. *Tellus* 16, 64–75.
- Birenzve, A., Eversole, J., Seaver, M., Francesconi, S., Valdes, E., Kulaga, H., 2003. Aerosol characteristics in a subway environment. *Aerosol Science and Technology* 37, 210–220.
- Bodhaine, B.A., Ahlquist, N.C., Schnell, R.C., 1991. Threewavelength nephelometer suitable for aircraft measurements of background aerosol scattering coefficient. *Atmospheric Environment* 10, 2268–2276.
- Bond, T.C., Anderson, T.L., Campbell, D., 1999. Calibration and intercomparison of filter-based measurements of visible light absorption by aerosols, *Aerosol Science and Technology*, 30, 582–600.
- Cachier H., Brémond M.P. and Buat-Ménard P., 1989. Determination of atmospheric soot carbon with a simple thermal method. *Tellus*, 41B, 379–390.
- Chan, L.Y., Lau, W.L., Zou, S.C., Cao, Z.X., Lai, S.C., 2002. Exposure level of carbon monoxide and respirable suspended particulate in public transportation modes while commuting in urban area of Guangzhou, China. *Atmospheric Environment* 36, 5831–5840.
- Chazette, P. and Liousse, C., 2001. A case study of optical and chemical apportionment for urban aerosols in Thessaloniki, *Atmos. Environ.*, 35, 2497–2506.
- Chazette, P., 2003. The monsoon aerosol extinction properties at Goa during INDOEX as measured with lidar, *J. Geophys. Res.*, 108(D6), 4187, doi:10.1029/2002JD002074.
- Chazette P., Randriamiarisoa H., Sanak J., Couvert P. and Flamant C., 2005. Optical properties of urban aerosol from airborne and ground-based in situ measurements performed during the ESQUIF program, *J. Geophys. Res.*, Vol. 110, No. D2, D0220610.1029/2004JD004810.
- Chillrud, S., Epstein, D., Ross, J., Sax, S., Pederson, J., Spengler, J., Kinney, P., 2004. Elevated airborne exposures of teenagers to manganese, chromium, and iron from steel dust and New York City's subway system. *Environmental Science and Technology* 38, 732–737.
- Fromme, H., Oddoy, A., Piloty, M., Krause, M., Lahrz, T., 1998. Polycyclic aromatic hydrocarbons (PAH) and diesel engine emission (elemental carbon) inside a car and a subway train. *The Science of the Total Environment* 217, 165–173.
- Gee, I., Raper, D., 1999. Commuter exposure to respirable particles inside buses and by bicycle. *The Science of the Total Environment* 235, 403–405.
- Hansen, A. D. A., and T. Novakov, 1990. Real time measurements of aerosol black carbon during the carbonaceous species methods comparison study, *Aerosol Sci. Technol.*, 12, 194–199.
- He, Q. S., Li, C. C., Mao, J. T., Lau, A. K. H., and Li, P. R., 2006. A study on the aerosol extinction-to-backscatter ratio with combination of micro-pulse LIDAR and MODIS over Hong Kong, *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 3243–3256.
- Johansson, C., Johansson, P.A., 2003. Particulate matter in the underground of Stockholm, *Atmospheric Environment*, 37, 3–9.
- John, W., Hering, S., Reischl, G., Sasaki, G., Goren, S., 1983. Characteristics of Nuclepore filters with large pore size – II. Filtration properties. *Atmospheric Environment*, 17, 373–382.
- Johnson, B. T., Osborne, S. R. and Haywood, J. M., 2008. Aircraft measurements of biomass-burning aerosols over West Africa during DABEX, submitted to *J. Geophys. Res.*
- Katrinak, K.A., Rez, P., Perkes, R., and Busek, P.R., 1993. Fractal geometry of carbonaceous aggregates from an urban aerosol, *Environ. Sci. Technol.*, 24, 539–547.
- Keskinen, J., Pietarinen, K. and Lehtimäki, M., 1992. Electrical Low Pressure Impactor. *J. Aerosol Sci.*, Vol. 23, No. 4, pp.353–360.
- Lorentz, L., 1880. Über die Refraktionkonstanten, *Annalen des Physikalische Chemie*, 11, 70–103.
- Lorenz, H. A., 1880. U ber die Beziehung zwischen der Frotzflanzungeschwindigkeit des Lichtes und der Körperdichte, *Annalen des Physikalische Chemie*, 9, 641–545.
- Michaels, R.A., 1996. Airborne particle excursions contributing to daily average particle levels may be managed via a 1 hr standard, with possible public health benefits. *Aerosol Sci Technol*, 25(4), 437–444.

- Michaels, R.A., Kleinman, M.T., 2000. Incidence and apparent health significance of brief airborne particle excursions. *Aerosol Sci Technol* 32(2), 93-105.
- Nieuwenhuijsen, M.J., Gomez-Perales, J.E., Colville, R.N., 2007. Levels of particulate air pollution, its elemental composition, determinants and health effects in metro systems. *Atmospheric Environment*, 41, 7995–8006.
- Pfeifer, G., Harrison, R., Lynam, D., 1999. Personal exposures to airborne metals in London taxi drivers and office workers in 1995 and 1996. *The Science of the Total Environment* 235, 253–260.
- Randriamiarisoa, H., Chazette, P., Couvert, P., Sanak, J., and Mégie, G., 2006. Relative humidity impact on aerosol parameters in a Paris suburban area, *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 1389-1407.
- Raut, J.-C., and Chazette, P., 2007. Retrieval of aerosol complex refractive index from a synergy between lidar, sunphotometer and in situ measurements during LISAIR experiment, *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 2797-2815.
- Raut, J.-C., and Chazette, P., 2008. Vertical profiles of urban aerosol complex refractive index in the frame of ESQUIF airborne measurements, *Atmos. Chem. Phys.*, 8, 901–919.
- Ripanuucci, G., Grana, M., Vicentini, L., Magrini, A., Bergamaschi, A., 2006. Dust in the underground railway tunnels of an Italian town, *Journal of Occupational and Environmental Hygiene*, 3, 16-25.
- Sciare, J., Oikonomou, K., Cachier, H., Mihalopoulos, N., Andreae, M.O., Maenhaut, W., Sarda-Estève, R., 2005. Aerosol mass closure and reconstruction of the light scattering coefficient over the Eastern Mediterranean Sea during the MINOS campaign. *Atmospheric chemistry and Physics*, 5, 2253-2265.
- Seinfeld, J. H. and Pandis, S. N., 1998. *Atmospheric Chemistry and Physics*, John Wiley & Sons, New York, 408 – 440.
- Sitzmann, B., Kendall, M., Watt, J., Williams, I., 1999. Characterisation of airborne particles in London by computer-controlled scanning electron microscopy. *The Science of the Total Environment* 241, 63–73.
- Turpin, B.J. and Lim, H.J., 2001. Species contribution to PM<sub>2.5</sub> mass concentrations: revisiting common assumptions for estimating organic mass. *Aerosol Science and Technology*, 35, 602-610.

---

## Annexe C

---

### Article de Raut et al. (2008b)

#### New approach using lidar measurements to characterize spatiotemporal aerosol mass distribution in an underground railway station in Paris

J.-C. Raut<sup>1</sup>, P. Chazette<sup>1</sup>, and A. Fortain<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement, Laboratoire mixte CEA-CNRS-UVSQ, CEA Saclay, F-91191 Gif-sur-Yvette, France

<sup>2</sup>SNCF, Direction de l'Innovation et de la Recherche, Paris, France

#### Abstract

For the first time eye safe lidar measurements were performed at 355 nm simultaneously to in-situ measurements in an underground station so as to test the potential interest of active remote sensing measurements to follow the spatiotemporal evolution of aerosol content inside such a confined micro-environment. The purpose of this paper is to describe a method enabling the conversion of lidar-derived aerosol extinction coefficient into aerosol mass concentrations (PM<sub>2.5</sub> and PM<sub>10</sub>). Different methods have been set up to link the mass concentration to the extinction coefficient determined by the lidar. Generally this relationship is supported by the size distribution. However, we also found a more direct bi-univocal relation between mass concentration and optical measurements that allows expecting a more general use of lidar measurement to survey indoor air quality.

**Keywords:** Subway; mass concentrations; lidar; air quality; underground station

#### 1. Introduction

Both the train and the subway are basic components of public transportation in order to limit the pollution and the greenhouse emissions by the megacities (Zielinski et al., 1997). Hence, the limitation of aerosol pollution in the underground station is of crucial importance (Leutwyler et al., 2002; Abadie et al., 2004). A first step is to identify the main sources of aerosols that are associated to the train traffic, the passengers in transit and the outdoor pollution. Several studies have focused on particulate

matter levels and chemical composition in subway systems mostly in Europe, e.g. in Berlin (Fromme et al., 1998), London (Pfeifer et al., 1999; Sitzmann et al., 1999; Adams et al., 2001), Stockholm (Johansson and Johansson, 2003) and Helsinki (Aarnio et al., 2005), but also in America (Birenzve et al., 2003; Chillrud et al., 2004) and recently in Paris (Raut et al., 2008). In this study we performed an original experiment including eye safe lidar measurements between 28 April and 9 May 2006 and a complementary experiment during the night of 25-26 October 2007. Experiments were performed inside the Magenta SNCF station, closed to Gare du Nord in the North of Paris (France). During these experiments we used the synergy between in situ and active remote sensing (elastic backscatter lidar at 355 nm) measurements to characterize the indoor air quality.

In the work of Raut et al. (2008), the optical, chemical and microphysical characterization of the particles in the railway Magenta station (close to Gare du Nord, Paris) was presented. This study permitted a clear distinction between periods with and without traffic. In traffic conditions, the measured particles are larger and more absorbing. They are mainly brought by the numerous trains and passengers travelling in the underground subway system and the dominance of iron oxides increases their absorbing properties. During the night, traffic stops, settling processes occur and the underground air is more influenced by ventilation carrying outdoor air inside the station. Particles are therefore almost similar to those measured in Paris streets.

Measurements are however often limited to a local area and not representative of the global repartition of particles in the station due to heterogeneous processes occurring with frequent train

passages. Lidar turns out to be a powerful tool to study the spatiotemporal distribution in such a confined space. In this paper, we present a coupling between lidar and situ measurements so as to follow the spatiotemporal distribution of aerosol mass concentrations in the railway station. Results of simple mass-optical relations are compared to theoretical forecasts.

## 2. Experimental set-up

The instruments were positioned in 2 places on the station platform in order to allow the coupling between active remote sensing and in situ measurements (Fig. 1). During the first experiment, the chemical composition, the size distribution, the mass concentration ( $PM_{2.5}$  and  $PM_{10}$ ) and the optical properties of underground aerosols have been measured. The corresponding instrumentation with chemical filters,  $PM_{2.5}$  and  $PM_{10}$  TEOM, 3-wavelength nephelometer, 9-wavelength aethalometer and ELPI particle sizer have been presented in Raut et al. (2008). The second experiment was dedicated to sensitivity study associating two lidars and in situ measurements of the aerosol scattering coefficient.

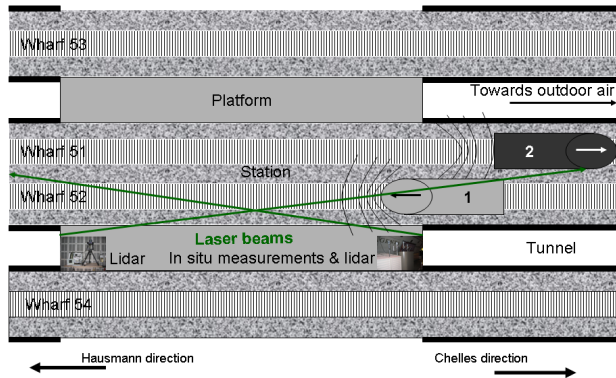


Figure 1: Schematic drawing of the subway station showing the relative locations of the instrumentation. All the measurements have been performed on platform n° 52. The first lidar and in situ instrument were working from 28 April 2006 to 9 May 2006, as well as during the second experiment realized during the night of 26 to 27 October 2007 together with the second lidar. The train directions have been reported in central wharfs n° 51 and 52.

Remote sensing measurements have been performed from two similar home-made lidars. The Lidar Aerosol UltraViolet (Aéroporté) (LAUV(A)) developed by the Commissariat à l’Energie Atomique (CEA) and the Centre National de la Recherche Scientifique (CNRS) generally enables to follow the

aerosol dispersion at the scale of the street and through the planetary boundary layer (Chazette et al., 2007). It is compact, embarquable (onboard car, ultra light aircraft, balloon or ship) and eye safe. It operates at the wavelength of 355 nm. An industrial version of LAUVA is currently marketed by the French company LEOSPHERE (www.leosphere.com) under the name of Easy Lidar®.

To study the influence of air masses motion in the station, a three-dimensional SONIC CSAT3 anemometer was used at the location of in situ instrumentation. It provides real-time and continuous measurements of air velocity in each direction and also temperature.

## 3. Theoretical basis

Basically the relation between the extinction coefficient  $\alpha_e^\lambda$  at wavelength  $\lambda$  and  $PM_{10}$  concentration  $M$  at time  $t$  is linear and driven by the so-called mean specific extinction cross-section  $\sigma_{e,M}^\lambda$  expressed in  $cm^2 \cdot kg^{-1}$ :

$$\alpha_e^\lambda(t) = \sigma_{e,M}^\lambda(t) \cdot M(t) \quad (1)$$

The purpose of this paper is to describe a method enabling the conversion of lidar-derived aerosol extinction coefficient at 355 nm into aerosol mass concentration. The specific cross-section must be therefore constant against the time.  $\sigma_{e,M}^\lambda$  can nevertheless be dependent on the aerosol composition through the traffic activity, i.e. high traffic intensity at daytime, or no traffic at nighttime. Equation 1 can be written:

$$\int_{r_{min}}^{r_{max}} \underbrace{\rho \cdot \frac{4}{3} \cdot \pi \cdot r^3 \cdot \frac{dN}{dr}(t) \cdot dr}_{y(t)} = k_{th} \cdot \int_{r_{min}}^{r_{max}} \underbrace{\sigma_e^\lambda(r,t) \cdot \frac{dN}{dr}(t) \cdot dr}_{A(t)} \quad (2)$$

This relation must be valid for each instant  $t$ . The coefficient  $k_{th}$  is the inverse of the mean specific extinction cross-section at wavelength  $\lambda$  and is independent of  $t$ .  $\rho$  is the average density of the particles.  $r$  is the radius of the particle, which is comprised between the minimum detectable by the particle sizer  $r_{min}$  and the maximum aerodynamic radius  $r_{max} \sim 5 \mu m$ .  $dN$  is the number of particles per  $cm^3$  whose radius is comprised between  $r$  and  $r+dr$ .  $\sigma_e^\lambda$  is the extinction cross-section of the particle of radius  $r$  at wavelength  $\lambda$ . Equation 2 is a linear system that can be written under the form:

$$\mathbf{A} \cdot \mathbf{k}_{th} = \mathbf{y} \quad (3)$$

where  $\mathbf{A}$  is the matrix of extinction coefficients (here reduced to a vector):

$$\mathbf{A}(t) = \int_{r_{min}}^{r_{max}} \sigma_e^\lambda(r,t) \cdot \frac{dN}{dr}(t) \cdot dr \quad (4)$$

and  $\mathbf{y}$  is the vector of mass concentrations:

$$y(t) = \int_{r_{\min}}^{r_{\max}} \rho \cdot \frac{4}{3} \cdot \pi \cdot r^3 \cdot \frac{dN}{dr}(t) \cdot dr \quad (5)$$

Although there is not any algebraic solution of Eq. 3, an approximate solution can be investigated in minimizing the error thanks to the least squares method. The gradient of the error  $e$  is:

$$\nabla e = \nabla \left( \| \mathbf{A} \cdot \mathbf{k}_{th} - \mathbf{y} \|^2 \right) \quad (6)$$

Hence

$$\nabla e = 2\mathbf{A}^T \cdot \mathbf{A} \cdot \mathbf{k}_{th} - 2\mathbf{A}^T \cdot \mathbf{y} \quad (7)$$

A new linear system is thus obtained and given by:

$$\mathbf{A}^T \cdot \mathbf{A} \cdot \mathbf{k}_{th} = \mathbf{A}^T \cdot \mathbf{y} \quad (8)$$

which determines the solution  $k_{th}$  in the least squares sense. Hereafter we will use that relation to link aerosol extinction coefficient and mass concentration derived from both size distribution and chemical measurements.

#### 4. Application to the observations

The approach described in Sect. 3 relies only on the knowledge of the size distribution that is derived from ELPI measurements. The calculations also suppose the a priori knowledge of the aerosol complex refractive index and the particle density. Indeed, the density is needed in the calculation of the term  $y$  and the extinction cross-section in  $\mathbf{A}$  will be determined through Mie theory under the hypothesis that all particles in the subway station are spherical. Those parameters have been retrieved in Raut et al. (2008) from optical and chemical measurements for conditions with and without traffic. We found a complex refractive index of  $1.56 - 0.035i$  ( $1.58 - 0.013i$ ) and a density of  $2$  ( $1.8$ ) g.cm<sup>-3</sup> for conditions with (without) traffic. In this method we assume that the structural and chemical nature of aerosols does not vary with time  $t$  during each considered period as previously observed by Raut et al. (2008): at daytime in traffic conditions or at nighttime without traffic. As a consequence, the complex refractive index and density are assumed constant with time. Such an hypothesis is consistent with the objective of searching a specific extinction cross-section independent of time. Aerodynamic radii  $r_{aer}$  measured by the ELPI have first to be corrected from density and thus converted in Stokes radius  $r$  before calculating ELPI-derived PM<sub>10</sub> and PM<sub>2.5</sub>.  $r$  is given by the formula reported in Seinfeld and Pandis (1998):

$$r = \frac{r_{aer}}{\sqrt{\rho}} \cdot \sqrt{\frac{C_c(r_{aer})}{C_c(r)}} \quad (9)$$

where  $C_c(r)$  is the Cunningham factor at radius  $r$  of a sphere having the same terminal settling velocity and density  $\rho$  as the particle.  $C_c(r)$ , also called slip correction factor, is given by:

$$C_c(r) = 1 + \frac{6.32 + 2.01 \cdot \exp(-0.1095 \cdot P \cdot 2 \cdot r)}{P \cdot r} \quad (10)$$

with  $P$  the pressure in cm Hg.  $r$  is obtained from an iterative procedure starting from  $r_{aer}$ , enabling to successively calculate  $r$  and  $C_c(r)$  in each step of iteration. Convergence is rapidly obtained after 10 steps.

Here, the adjusted parameter  $k_{th}$  could be retrieved to convert the extinction coefficient (Eq. 4) simulated from Mie code using the size distribution as input parameter (together with the complex refractive index) into mass concentration, which is also constrained from the number size distribution (Eq. 5). Notwithstanding, only mass concentration measurements from TEOM instrument can serve as reference guidelines. Uncertainties are moreover expected in ELPI measurements, especially in the presence of coarse particles whose number is not huge but that play a major role in mass concentration retrievals. Hence ELPI-derived mass concentrations have been compared to mass time series measured from TEOM reported in Raut et al. (2008). The results are presented in Fig. 2 for PM<sub>10</sub> (Stokes radius lower than 3.5 μm) and PM<sub>2.5</sub> (Stokes radius lower than 1.8 μm).

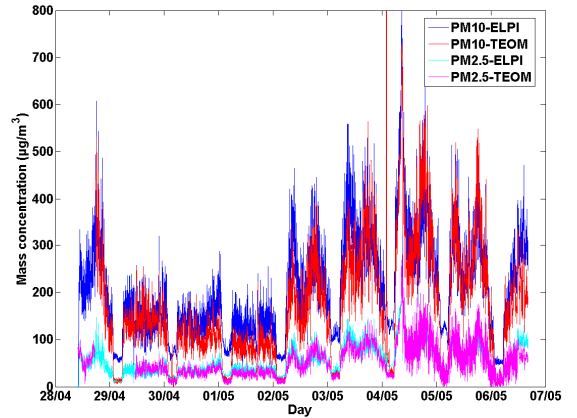


Figure 2: Times series of mass concentrations measured by TEOM and retrieved from ELPI in the case of PM<sub>10</sub> particles (Stokes radius lower than 3.5 μm) and PM<sub>2.5</sub> particles (Stokes radius lower than 1.8 μm).

A good agreement is found between the mass levels determined by both instruments when the following corrections have been applied: ELPI-derived mass concentrations need to be multiplied by a constant factor  $\eta_{PM10} \sim 0.72$  for PM<sub>10</sub> and  $\eta_{PM2.5} \sim 0.80$  for PM<sub>2.5</sub>. The final expression for  $k_{th}$  is then:

$$k_{th} = \eta_{PM10} \frac{\sum_t \left( \int_{r_{min}}^{r_{max}} \sigma_e^\lambda(r, t) \cdot \frac{dN}{dr}(t) \cdot dr \right) \cdot \left( \int_{r_{min}}^{r_{max}} \rho \cdot \frac{4}{3} \cdot \pi \cdot r^3 \cdot \frac{dN}{dr}(t) \cdot dr \right)}{\sum_t \left( \int_{r_{min}}^{r_{max}} \sigma_e^\lambda(r, t) \cdot \frac{dN}{dr}(t) \cdot dr \right)^2} \quad (11)$$

Figure 3 and Figure 4 show very nice correlations between PM<sub>10</sub> concentrations derived from ELPI and extinction coefficients at 355 nm during periods with and without traffic respectively. Because ELPI measurements were performed every minute, almost 15000 (2500) points have been used to retrieve  $k_{th}$  for traffic (no traffic) conditions. The very clear linear relations between mass and optical parameters confirm the hypothesis that the chemical nature of the particles does not change in the railway station, except during the transition between traffic and no traffic periods. We found  $k_{th} \sim 6.47 \times 10^5 \mu\text{g.m}^{-2}$  and  $k_{th} \sim 3.73 \times 10^5 \mu\text{g.m}^{-2}$ , i.e.  $\sigma_{e,M}^\lambda \sim 1.55 \times 10^7 \text{ cm}^2.\text{kg}^{-1}$  and  $\sigma_{e,M}^\lambda \sim 2.68 \times 10^7 \text{ cm}^2.\text{kg}^{-1}$  during traffic and no traffic periods, respectively. The specific extinction cross-section is 73% larger during the night since the differences between traffic and no traffic conditions are mainly ascribed to variations in mass levels rather than in particle size (Raut et al., 2008).

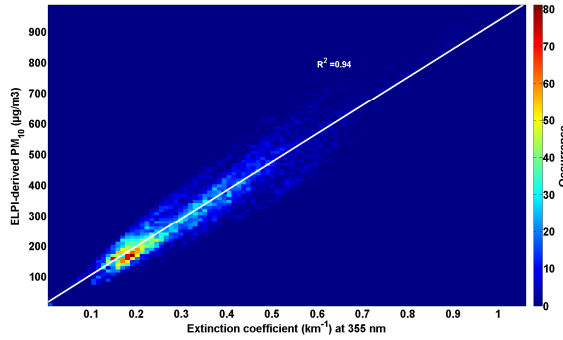


Figure 3: Scatterplot between ELPI-derived mass concentrations and extinction coefficients at 355 nm for observations during traffic periods in the whole campaign.

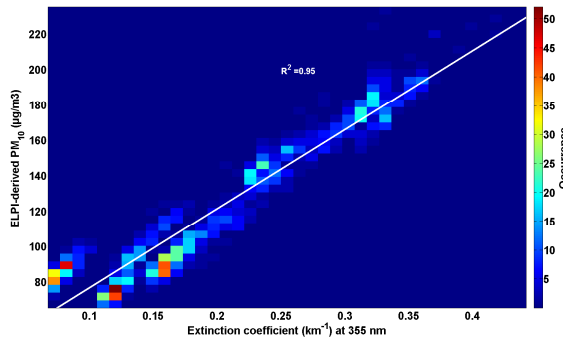


Figure 4: Similar as Fig. 3 for nighttime observations without traffic during the whole campaign.

## 5. Mass distribution approach in the subway station

Section 4 suggested that the knowledge of extinction coefficients measured in the underground railway station is sufficient to determine aerosol mass concentrations. Nevertheless, this approach uses the number size distribution obtained in a precise location with ELPI to retrieve extinction coefficient. The two dimensional distribution of mass levels in the station thus requires a synergy with remote sensing measurements. Lidar observations permit to achieve this purpose.

### 5.1 Inversion of lidar data in horizontal shooting mode

In homogeneous atmospheres, backscatter and extinction coefficients are commonly determined by the inversion of lidar signals by using the slope method, i.e., from a linear least-squares fit to the logarithm on the range-corrected lidar return. This method was proposed by Collis (1966) and applied in many studies (e.g. Chazette et al., 2007). In an underground subway station, the hypothesis of homogeneous atmosphere is no longer valid, since the numerous train passages generate heterogeneous repartition of the pollutants in the confined environment. It was possible to use the slope method only during the night after the last train runs (no traffic). This method has been tested during the night of 25-26 October 2007. Two similar lidar systems located at both sides of Magenta station were shooting towards the opposite tunnel (Fig. 1). Extinction coefficients at 355 nm derived from lidar measurements after removing the molecular contribution were compared to extinction coefficient retrieved from nephelometer and aethalometer observations at the same wavelength (Raut et al., 2008): nephelometer measurements have been converted to 355 nm using the Angström exponent (Angström, 1964). Times series of extinction coefficient given in Fig. 5 are in very good accordance between the three instruments, since they efficiently reproduce the regular decrease of the concentrations during the night, i.e. from  $0.37 \text{ km}^{-1}$  at 01:30 to  $0.28 \text{ km}^{-1}$  at 04:30 local time. The slope method provides good results without traffic due to settling processes that operate gradually and homogenization of concentrations in the subway station after the last train passage.



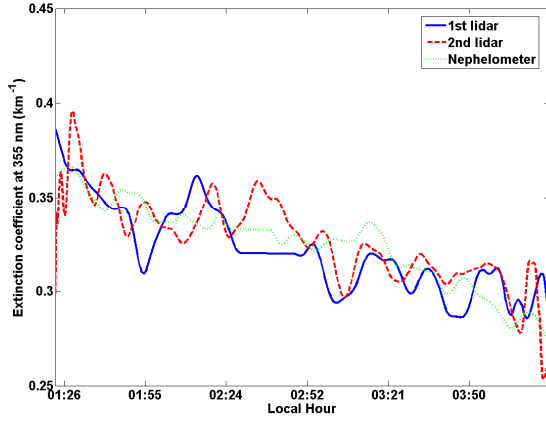


Figure 5: Extinction coefficient derived from both lidar systems and retrieved from the coupling between nephelometer and aethalometer measurements during the night of 26 to 27 October 2007.

During traffic, this method cannot be applied since particles do not have time to be deposited between two train passages. One has therefore recourse to the well-known Klett inversion method (Klett, 1981), which requires the backscatter-to-extinction ratio (BER), inverse of the so-called lidar ratio, and a reference point as constraint. In this study, in the absence of Rayleigh domain, in situ measurements located next to the entrance of the opposite tunnel to the lidar (Fig. 1) can serve as reference point. The aerosol complex refractive index determined in Raut et al. (2008) is used as input parameter in a Mie code, allowing the retrieval of BER and of the aerosol backscatter coefficient  $\beta_{ref}^{355}$  at 355 nm at the location of in situ measurements. In this paper, we make the assumption that BER is constant in the railway station. BER is indeed an intensive aerosol property, i.e., a property that does not depend on the number density of the aerosol but rather on physical and chemical properties such as size distribution, shape and composition, which can be considered uniform in the station like the specific extinction cross-section (Sect. 4). Then, extinction coefficients are derived from lidar signals by backward Klett inversion in the station and by forward Klett inversion in the tunnel after removing the molecular contribution.

## 5.2 Semi empirical mass-optical relation

Under the hypothesis of spatial homogeneity of both chemical and structural aerosol properties due to random turbulent processes in the railway station by many train passages, both the complex refractive index and the aerosol density can be considered the same in any location in the station. This implies that extinction cross-section is also the same anywhere in the station during a short time period  $T$  when normalized size

distribution does not significantly varies. Rush periods presenting a high variability are excluded.

At the distance  $x$  of the lidar, the number size distribution  $dN/dr(x)$  is the product of the normalized number size distribution  $dN_n/dr$  by the total number of particles  $N_{tot}(x)$ :

$$\frac{dN(x)}{dr} = N_{tot}(x) \cdot \frac{dN_n}{dr} \quad (12)$$

Given that the extinction cross-section  $\langle \sigma_e^{355} \rangle_T$  is assumed constant during  $T$ ,  $N_{tot}(x)$  is then expressed with the lidar-derived extinction coefficient  $\alpha_e^{355}(x)$  that is known at each point  $x$  of the underground station.

$$N_{tot}(x) = \frac{\alpha_e^{355}(x)}{\langle \sigma_e^{355} \rangle_T} \quad (13)$$

In using Eq. 12 and Eq. 13, the mass concentration during the short period  $T$  is:

$$\langle M(x) \rangle_T = \eta_{PM10} \cdot \frac{\alpha_e^{355}(x)}{\langle \sigma_e^{355} \rangle_T} \cdot \rho \cdot \frac{4}{3} \cdot \pi \cdot \overline{\langle r^3 \rangle_T} \quad (14)$$

where the mean cubic radius, averaged over  $T$ , can be written:

$$\overline{\langle r^3 \rangle_T} = \int_{r_{min}}^{r_{max}} r^3 \cdot \left\langle \frac{dN_n}{dr} \right\rangle_T dr \quad (15)$$

Since  $dN_n/dr$  is constant in each class  $c$  of the ELPI delimited by  $r_{min}(c)$  and  $r_{max}(c)$ , the semi-empirical mass-optical relation can be expressed under the form:

$$\langle M(x) \rangle_T = k_1^T \cdot \alpha_e^{355}(x) \quad (16)$$

with:

$$k_1^T = \eta_{PM10} \cdot \rho \cdot \frac{\pi}{3} \cdot \frac{1}{\langle \sigma_e^{355} \rangle_T} \cdot \sum_c \left[ \langle N_n(c) \rangle_T \cdot \frac{r_{max}(c)^4 - r_{min}(c)^4}{r_{max}(c) - r_{min}(c)} \right] \quad (17)$$

## 5.3 Empirical mass-optical relation

Traditionally empirical mass-optical relations are investigated so as to determine the composition of airborne  $PM_{2.5}$  in urban air in an effort to assimilate satellite measurements of aerosol column optical depth into air quality transport models. Recent satellite data from the MODIS (Chu et al., 2003) or Multi angle Imaging Spectro-Radiometer (MISR) (Liu et al., 2004) have tremendous potential for mapping global distribution of aerosols and their properties and for deriving indirect estimates of PM, particularly  $PM_{2.5}$ . Several studies, e.g. Wang and Christopher (2003), Gupta et al. (2004), have shown good linear correlation between aerosol optical depth, which is the integral of atmospheric

extinction from the surface to the top of the atmosphere, and particulate matter levels.

In this study an empirical relation between aerosol extinction and mass concentration can also be investigated. Previous relations from Eq. 2 and Eq. 16 are highly dependent on the knowledge of the size distribution. In this section, we are looking for a direct relation. First, nephelometer data are utilized for comparison to PM<sub>2.5</sub> levels rather than PM<sub>10</sub> levels, since PM<sub>2.5</sub> and PM<sub>10</sub> show similar patterns at daytime but PM<sub>10</sub> concentrations present huge discrepancies between daytime (traffic) and nighttime (no traffic) periods due to stronger settling rates than for PM<sub>2.5</sub> (Raut et al., 2008). The PM<sub>2.5</sub> evolution pattern is therefore more similar to that of aerosol scattering coefficient. Besides, the most optically efficient particles have a radius close to the wavelength. The effective radius  $r_{eff}$  of the distribution is defined as:

$$r_{eff} = \frac{\int_{r_{min}}^{r_{max}} r^3 \cdot \frac{dN_n}{dr} dr}{\int_{r_{min}}^{r_{max}} r^2 \cdot \frac{dN_n}{dr} dr} \quad (18)$$

The mean effective radius during the whole campaign was found to be  $\sim 0.79 \mu m$  during traffic activities. Thus the wavelength 700 nm of the nephelometer has been chosen rather than 450 or 550 nm. In Fig. 6 a scatterplot shows that PM<sub>2.5</sub> concentration has a very good linear relationship with the scattering coefficient at 700 nm  $\alpha_s^{700}$ . At any instant  $t$  we have

$$PM_{2.5}(t) = C_1 \cdot \alpha_s^{700}(t) \quad (19)$$

with a linear regression slope  $C_1 \sim 4.36 \times 10^5 \mu g \cdot m^{-2}$ .

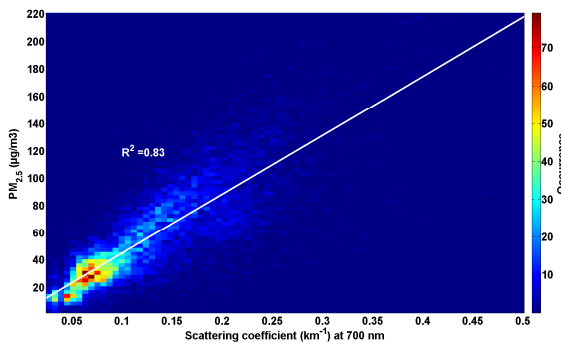


Figure 6: Scatterplot between PM<sub>2.5</sub> measured by the TEOM and scattering coefficient measured by the nephelometer at 700 nm and corrected from the non-observed angles.

During traffic the ratio  $C_2$  between PM<sub>2.5</sub> and PM<sub>10</sub> is almost constant ( $\sim 0.3$ , Raut et al.(2008)). Without traffic activity,  $C_2$  is close to 1. PM<sub>10</sub> concentration  $M$  can thus be written versus optical properties at the emitted wavelength of the lidar:

$$M(x) = \frac{C_1}{C_2} \cdot \frac{\alpha_e^{355}(x)}{\omega_0^{355}} \cdot \left( \frac{355}{700} \right)^a \quad (20)$$

where  $a$  is the scattering Angström exponent derived from nephelometer data at 450 and 700 nm and  $\omega_0^{355}$  is the single-scattering albedo at 355 nm. Furthermore, Raut et al. (2008) showed a good correlation between  $a$  and  $\omega_0^{355}$ :

$$\omega_0^{355} = \gamma_1 \cdot a + \gamma_2 \quad (21)$$

with  $\gamma_1 \sim 0.15$  and  $\gamma_2 \sim 0.52$ .

Coarse particles with low  $a$  raised by train passages during traffic are associated with a small  $\omega_0^{355}$ , suggesting a higher absorption than that encountered for fine particles without traffic. It can be due to both the presence of absorbing iron oxides and the internally generated black carbon from the degradation of carbonaceous brake components. The relation defined by Eq. 21 can serve in expressing  $\omega_0^{355}$  for periods when absorption coefficients measured by the aethalometer were not available. Finally, during a period  $T$  when  $C_2$  coefficient can be applied and  $a$  does not significantly vary, the empirical mass-optical relationship is given by:

$$\langle M(x) \rangle_T = k_2^T \cdot \alpha_e^{355}(x) \quad (22)$$

$$\text{with } k_2^T = \frac{C_1}{C_2} \cdot \frac{1}{\gamma_1 \cdot \langle a \rangle_T + \gamma_2} \cdot \left( \frac{355}{700} \right)^{\langle a \rangle_T} \quad (23)$$

This method presents an advantage in using only nephelometer and TEOM data basically without having systematically recourse to the size distribution, except for the correction of the non-observed angles of the nephelometer that is close to 30 % in the subway station. It supposes however a knowledge on the single-scattering albedo. This approach provides a good approximation in a very low required computer time.

## 6. Application to lidar signals in the tunnel

### 6.1 Useful parameters

During the campaign, lidar profiles have been regularly affected by parasitic reflection on signalization boards. Only a few periods allow a complete and consistent synergy between remote sensing and in situ measurements. On the 5 May, we performed lidar measurements towards the opposite tunnel. Microphysical, chemical and optical in situ measurements enabled the retrieval of the useful parameters:  $\rho$ ,  $\langle \alpha_e^{355} \rangle_T$ ,  $\langle r^3 \rangle_T$ ,  $C_1$ ,  $C_2$ ,  $\langle \omega_0^{355} \rangle_T$ ,  $\langle a \rangle_T$ .

Due to the deficiencies in the rolling tape of the aethalometer, no absorption measurements were carried out on the 5 May. As already precised in Sect. 5.3,  $\langle \omega_0^{355} \rangle_T$  has thus been assessed from Eq. 21. Table 1 summarizes the values for those parameters

Table 1. Set of useful parameters in the case of the semi-empirical and empirical methods determined on 5, 6 May (with traffic) and during nocturnal conditions (without traffic). The standard deviations due to natural variability in the considered periods are also reported between parentheses.

	$C_2$	$\langle a \rangle_T$	$\langle r^3 \rangle_T (\mu\text{m}^3)$	$\langle \sigma_e^{355} \rangle_T (\text{cm}^2)$	$\langle \omega_0^{355} \rangle_T$
5 May 14:00-16:00 (traffic)	0.27 ( $\pm 0.02$ )	0.75 ( $\pm 0.10$ )	$7.73 \times 10^{-3}$ ( $\pm 1.00 \times 10^{-3}$ )	$6.74 \times 10^{-10}$ ( $\pm 1.00 \times 10^{-10}$ )	0.63 ( $\pm 0.03$ )
6 May 12:00-13:00 (traffic)	0.32 ( $\pm 0.03$ )	1.23 ( $\pm 0.15$ )	$8.04 \times 10^{-3}$ ( $\pm 1.00 \times 10^{-3}$ )	$11.53 \times 10^{-10}$ ( $\pm 1.70 \times 10^{-10}$ )	0.71 ( $\pm 0.03$ )
Without traffic (mean values)	0.70 ( $\pm 0.30$ )	1.90 ( $\pm 0.20$ )	$2.83 \times 10^{-3}$ ( $\pm 0.30 \times 10^{-3}$ )	$3.37 \times 10^{-10}$ ( $\pm 0.50 \times 10^{-10}$ )	0.86 ( $\pm 0.05$ )

Table 2. Values of  $k_{th}$ ,  $k_I^T$  and  $k_2^T$  (in  $10^5 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-2}$ ) enabling the conversion of extinction coefficient at 355 nm to  $\text{PM}_{10}$  and determined on 5, 6 May (with traffic) and during nocturnal conditions (without traffic). The relative uncertainties due to the variability of measured parameters are reported between parentheses and the relative deviations to the theoretical values are also given.

	$k_{th}$	$k_I^T$	$(k_I^T - k_{th})/k_{th}$	$k_2^T$	$(k_2^T - k_{th})/k_{th}$
5 May 14:00-16:00 (traffic)	6.47	6.72 ( $\pm 30\%$ )	4 %	6.11 ( $\pm 15\%$ )	6 %
6 May 12:00-13:00 (traffic)	6.47	4.21 ( $\pm 30\%$ )	35 %	4.20 ( $\pm 15\%$ )	35 %
Without traffic (mean values)	3.73	443 ( $\pm 30\%$ )	19 %	1.46 ( $\pm 65\%$ )	60 %

determined between 14:00 and 16:00 local time. BER and  $\beta_{ref}^{355}$  were also retrieved from the aerosol complex refractive index used as input parameter in a Mie code. We found  $\text{BER} \sim 0.0135 \text{ sr}^{-1}$  ( $\pm 0.0016 \text{ sr}^{-1}$ ) and  $\beta_{ref}^{355} \sim 0.0049 \text{ km}^{-1}\cdot\text{sr}^{-1}$  ( $\pm 0.0007 \text{ km}^{-1}\cdot\text{sr}^{-1}$ ) for aerosol contribution only, which leads to a mean aerosol extinction coefficient of  $0.36 \text{ km}^{-1}$  ( $\pm 0.09 \text{ km}^{-1}$ ) at the location of in situ measurements in the considered period. This period is characterized by the presence of coarse particles, clearly highlighted by a small  $C_2$  ( $\sim 0.27$ ) indicating that  $\text{PM}_{2.5}$  particles barely represent 30% of the total mass. Other indicators of those large particles are the Angström coefficient lower than unity ( $\langle a \rangle_T \sim 0.75$ ), the elevated mean cubic radius ( $\langle r^3 \rangle_T \sim 7.73 \times 10^{-3} \mu\text{m}^3$ ) and the important extinction cross-section ( $\langle \sigma_e^{355} \rangle_T \sim 6.74 \times 10^{-10} \text{ cm}^2$ ). Aerosols are very absorbing ( $\langle \omega_0^{355} \rangle_T \sim 0.63$ ) as a large proportion of iron oxides is raised by train passages during this period between the two daily peaks in concentrations levels. As a comparison, values are also reported in Table 1 for conditions without traffic activity. The mean cubic radius and the extinction cross-section are twice lower as during traffic activities, suggesting the predominance of the fine mode in the size distribution. Optical properties are moreover very close to those reported in Paris streets (Raut and Chazette, 2007) with  $\langle a \rangle_T \sim 1.90$ , and  $\langle \omega_0^{355} \rangle_T \sim 0.86$ , reminding the influence of ventilation processes carrying the outdoor air in the absence of trains and passengers.

The coefficients  $k_I^T$  and  $k_2^T$  enabling the conversion of extinction coefficient measured by the lidar to  $\text{PM}_{10}$  are reported in Table 2 as well as their uncertainties due to natural variability and compared to the theoretical values expected in Sect. 4. On the 5 May between 14:00 and 16:00 local time, a very good agreement is found between the retrieved and expected values. Errors as small as 4% and 6% have been assessed for  $k_I^T$  and  $k_2^T$ , respectively, in comparison to  $k_{th}$ . These small differences may be ascribed either to uncertainties in the approximations (average values over the period) or to natural deviation from the theoretical law established for the whole campaign. It suggests a fair consistency between the different approaches and reveals the robustness of such a closure study between in situ and remote sensing data to assess mass distribution from lidar. Without traffic activities in the subway station, adverse conclusions are highlighted. Errors of 19% are observed in the retrieval of  $k_I^T$ , and they can reach 60% for the empirical mass-optical relation. It can be due to the very limited periods when traffic really stops. As a matter of fact, concentrations need time for stabilization after the last train runs. Those periods are too small so as to efficiently average measurements and decrease the natural noise. The main uncertainties are related to the determination of  $C_2$  since the  $\text{PM}_{2.5}$  to  $\text{PM}_{10}$  ratio is highly variable during the night (Raut et al., 2008). In our case (Table 1) the value 0.7 has been assessed, but with a standard deviation as large as 0.3, leading to a relative uncertainty as large as  $\sim 50\%$  in the determination of

$k_2^T$ . Furthermore, the coefficient  $\eta_{PM10}$  cannot apply well to nocturnal measurements (without traffic) since its determination required an averaging over the whole campaign, mainly controlled by the more numerous values observed during traffic activities. The corresponding uncertainty on  $k_2^T$  ( $< 10\%$ ) is lower than the one obtained for  $C_2$ . Thus, the retrieval of mass distribution in the railway station without traffic should be performed with great caution thanks to an increasing number of nocturnal cases.

## 6.2 Lidar-derived mass profiles

The semi-empirical approach with parameter  $k_I^T$  has been used for lidar signals obtained on 5 May between 14:15 and 15:05 local time. Results are given in  $PM_{10}$  in Fig. 7. The horizontal white band represents the entrance of the tunnel; the corresponding signal has been withdrawn since parasitic signal occurred due to reflection on the wall of the tunnel. This band divides the station in two areas. The first one corresponds to measurements over the platform from 70 m, owing to the overlap factor, to 227 m, the length of the platform. The second region, from 240 m to 300 m, corresponds to measurements inside the tunnel before the light of the laser meets the wall in the bend. The six thick vertical bands containing brawn-white colour correspond to train arrivals on the station platform where the lidar is localized. The seven narrow brawn-white vertical bands have been obtained when a train was getting out of the station on the opposite platform. The mean value obtained at 220 m, position of the TEOM, is obviously consistent with the TEOM measurements that are  $268 \pm 64 \mu\text{g.m}^{-3}$ , due to the closure study. Very complex structures in the repartition of aerosols are highlighted by the lidar, suggesting a huge importance of dust settling processes influenced by the dynamics of the platform linked to many train passages.

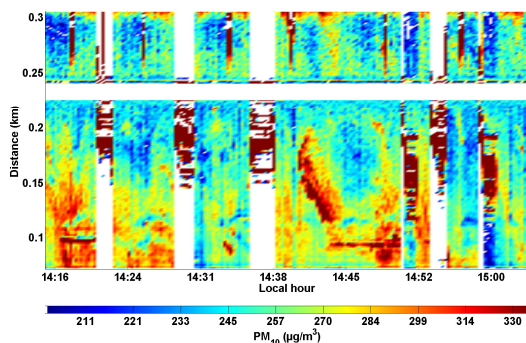


Figure 7: Temporal evolution of horizontal profiles of  $PM_{10}$  retrieved from lidar shots towards the opposite tunnel on the 5 May between 14:15 and 15:05. The horizontal white band represents the entrance of the tunnel; the corresponding signal has been withdrawn since parasitic signal occurred due to

reflection on the wall of the tunnel. This band divides the station in two areas. The bottom part of the figure corresponds to measurements over the platform. The upper part of the figure corresponds to profiles inside the tunnel. The six thick vertical bands containing brawn-white colour correspond to train arrivals on the station platform where the lidar is localized. The seven narrow brawn-white vertical bands have been obtained when a train was getting out of the station on the opposite platform.

The main feature that can be noticed on Fig. 7 is the higher concentrations observed close to the lidar emission. Wind directions and strengths measured by the anemometer between 14:15 and 15:05 have been reported on Fig. 8a. They indicate a strong tendency of air to blow towards the lidar emission ( $270^\circ$ ). The corresponding occurrences of air velocities in the direction  $[270^\circ, 90^\circ]$  are given in Fig. 8b. A Gaussian distribution curve is observed whose centre is located at  $-0.5 \text{ m.s}^{-1}$ . The high proportion of negative values confirm a principal displacement of air from the opposite tunnel towards the tunnel entrance close to the lidar. The opposite tunnel indeed emerges in the ambient air only a few hundred meters from the subway station. Pollutants can therefore easily diffuse into the indoor environment, acting as a confined space that permits concentration of contaminants close to the lidar emission. It is moreover particularly difficult to interpret such turbulent processes because trains follow on from each other with a high intensity. During the ten minutes without any train (from 14:40 to 14:50), particles seem to be carried away from 200 m to 100 m by the air flow. It may be due to air compression created by two sequential train passages in opposite directions (Fig. 1) and to a possible vortex along the wall of the opposite tunnel when the last train was getting out of the station, leading to dust uptake.

## 6.3 Mass distribution from multiangle lidar profiles

Lidar can finally be used in scanning mode to provide a two-dimensional distribution of the aerosols in the underground station. The section only gives an overview of the potential interest of the lidar to survey pollution in the station. Such measurements with multiangle profiles have been performed on 6 and 8 May towards the opposite tunnel. On the 6 May we found  $k_I^T \sim 4.21 \times 10^5 \mu\text{g.m}^{-2}$  and  $k_2^T \sim 4.20 \times 10^5 \mu\text{g.m}^{-2}$  (Table 1 and Table 2). A good agreement is found between these values but they differ from  $k_{th}$  by 35%.  $k_{th}$  is indeed representative of the mean conditions during the campaign but 6 May turned out to be a particular case for a week-end with important concentrations observed. 35% is therefore an indicator of the expected accuracy in the conversion of lidar-derived extinction into  $PM_{10}$ . On the 8 May there were not enough data to efficiently retrieve  $k_I^T$  and

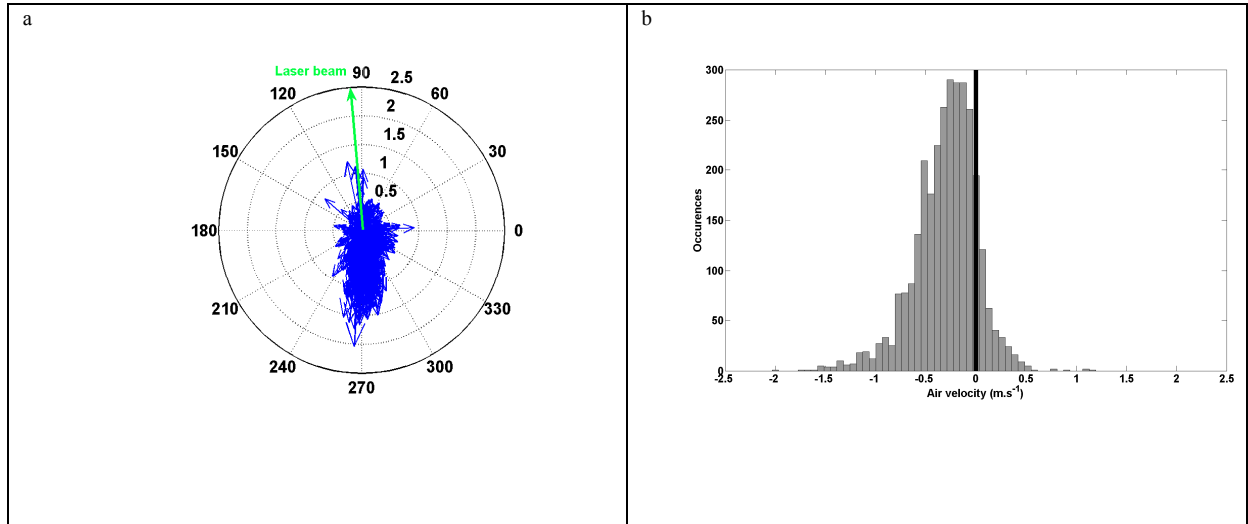


Figure 8: Wind directions (in degrees) and strengths (in  $\text{m.s}^{-1}$ ) measured by the anemometer between 14:15 and 15:05 (a). The orientation of lidar signal is reported in green. Lidar emission is located at  $270^\circ$  and the opposite tunnel is at  $\sim 91^\circ$ . In (b), the corresponding occurrences of air velocities in the direction  $[270^\circ, 90^\circ]$  are given. Negative values are reported for air blowing between  $180$  and  $360^\circ$ .

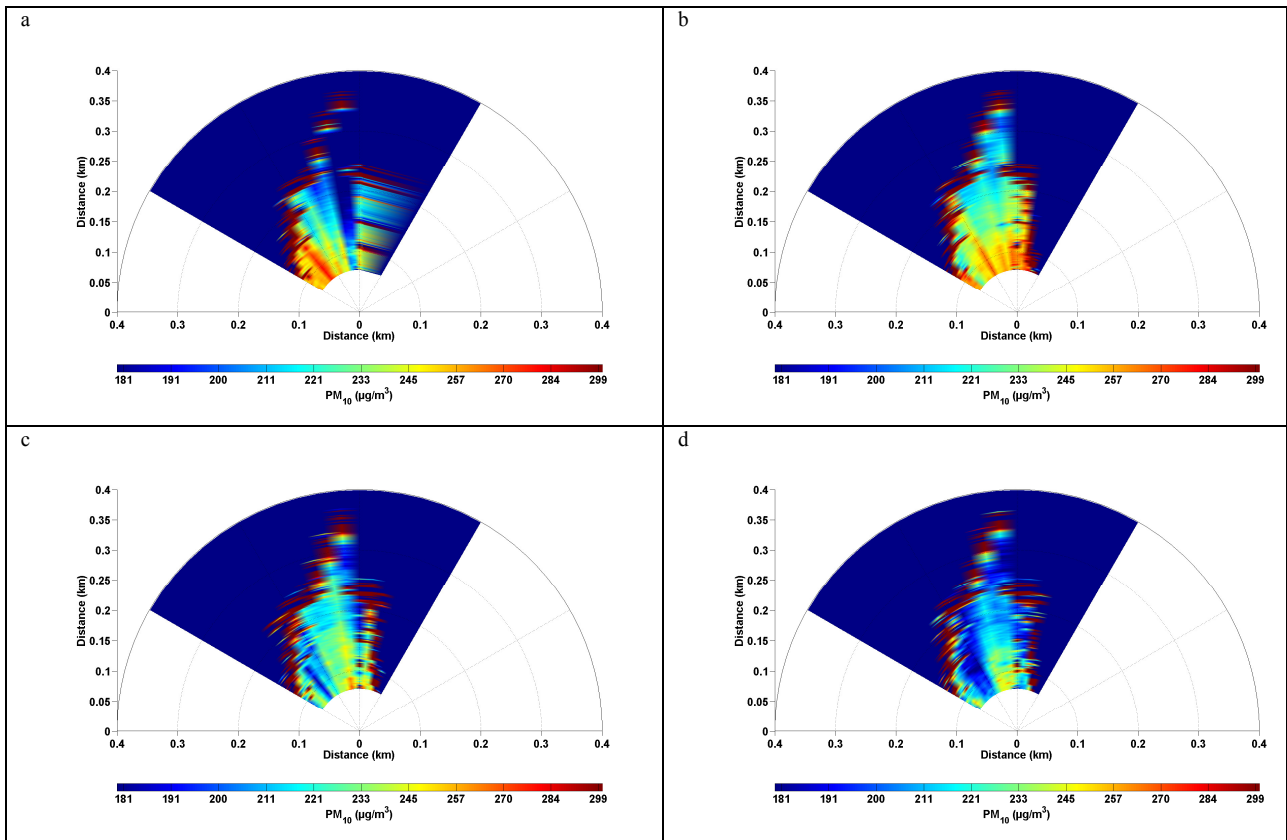


Figure 9: Two-dimensional representation of horizontal profiles of  $\text{PM}_{10}$  retrieved from lidar shots during multiangle measurements on the 6 May between 12:00 and 12:30 (a), between 12:30 and 13:00 (b) and on the 8 May between 15:45 and 16:15 (c), between 16:15 and 16:35 (d).

$k_2^T$ : as a consequence the theoretical value has been applied. Range-corrected lidar signals have been calibrated by the system constant. This latter has been determined after Klett inversion when the lidar was shooting towards the centre of the tunnel

(azimuthal angle of  $1^\circ$ ) neglecting the transmission term. Fig. 9 presents four profiles of multiangle lidar signals after conversion into mass concentrations. Angles have been multiplied by a factor 10 for visualization. Heterogeneous distributions are

observed due to the turbulent processes occurring in the station. The higher concentrations are also observed in the vicinity of lidar emission, as indicated in Sect. 6.2. Lidar system enables to give useful information on how measurements are representative of such a complex micro-environment. It can particularly be used to know where in situ instruments should be set up so as to perform specific air quality monitoring for each station.

## 7. Conclusion

The original use of lidar measurements for air quality monitoring in underground stations requires to be first validated by comparison to in situ reference instruments. Such a synergy has enabled a complete aerosol optical closure study. By this way, an important temporal and spatial variability of particle distribution and optical features has been highlighted along the platform. The most direct method is based on a bi-univocal relation between optics and mass. It relies on the ability of lidar to efficiently describe the variability of mass concentrations ( $PM_{2.5}$  and  $PM_{10}$ ) in the subway station. Mass concentrations can be assessed with a total uncertainty close to 30% during traffic periods, which is of the same order as that linked to TEOM measurements when taking into account the spreading of the aerosol mass concentration along the platform. Lidar provides a new approach to map the aerosol concentrations in a complex confined environment. It also stresses how important lidar measurements are to adapt a policy for both the forecast and the prevention of staff and passengers exposure to particulate pollution.

## References

- Aarnio, P., Yli-Tuomi, T., Kousa, A., Mäkelä, T., Hirsikko, A., Hämeri, K., Räisänen, M., Hillamo, R., Koskentalo, T., Jantunen, M., 2005. The concentration and composition of and exposure to fine particles ( $PM_{2.5}$ ) in the Helsinki subway system, *Atmospheric Environment*, 39, 5059-5066.
- Abadie, M., Limam, K., Bouilly, J., Génin, D., 2004. Particle pollution in the French high-speedtrain (TGV) smoker cars: measurement and prediction of passengers exposure, *Atmospheric Environment*, 38, 2017-2027.
- Adams, H.S., Nieuwenhuijsen, M.J., Colville, R.N., McMullen, M.A.S., Khandelwal, P., 2001. Fine particles ( $PM_{2.5}$ ) personal exposure levels in transport microenvironments, London, UK, *The Science of the Total Environment*, 279, 29-44.
- Angström, A., 1964. The parameters of atmospheric turbidity. *Tellus* 16, 64-75.
- Birenzige, A., Eversole, J., Seaver, M., Francesconi, S., Valdes, E., Kulaga, H., 2003. Aerosol characteristics in a subway environment. *Aerosol Science and Technology* 37, 210-220.
- Chazette, P., Sanak, J., and Dulac, F., 2007. New Approach for Aerosol Profiling with a Lidar Onboard an Ultralight Aircraft: Application to the African Monsoon Multidisciplinary Analysis, *Environ. Sci. Technol.*, 41, 8335-8341.
- Chillrud, S., Epstein, D., Ross, J., Sax, S., Pederson, J., Spengler, J., Kinney, P., 2004. Elevated airborne exposures of teenagers to manganese, chromium, and iron from steel dust and New York City's subway system. *Environmental Science and Technology* 38, 732-737.
- Chu, D.A., Kaufman, Y.J., Zibordi, G., Chern, J.D., Mao, J., Li, C., Holben, B.N., 2003. Global monitoring of air pollution over land from the Earth observing System-Terra Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer (MODIS). *Journal of Geophysical Research* 108, D21.
- Collis, R. T. H., 1966. Lidar: a new atmospheric probe, *Q.J.R., Meteorol. Soc.*, 92, 220-230.
- Fromme, H., Oddoy, A., Piloty, M., Krause, M., Lahrz, T., 1998. Polycyclic aromatic hydrocarbons (PAH) and diesel engine emission (elemental carbon) inside a car and a subway train. *The Science of the Total Environment* 217, 165-173.
- Gupta, P., Christopher, S. A., Wang, J., Gehrig, R., Lee, Y., Kumar, N., 2006. Satellite remote sensing of particulate matter and air quality assessment over global cities, *Atmospheric Environment*, 40, 5880-5892.
- Johansson, C., Johansson, P.A., 2003. Particulate matter in the underground of Stockholm, *Atmospheric Environment*, 37, 3-9.
- Klett, J. D., 1981. Stable analytical inversion solution for processing lidar returns. *Appl. Opt.*, 20, 211-220.
- Leutwyler, M., Siegmann, K., Monn, Ch., 2002. Suspended particulate matter in railway coaches. *Atmospheric Environment* 36 (1), 1-7.
- Liu, Y., Park, R. J., Jacob, D. J., Li, Q., Kilaru, V., and Sarnat, J. A., 2004. Mapping annual mean ground-level  $PM_{2.5}$  concentrations using multiangle imaging spectroradiometer aerosol optical thickness over the contiguous united states, *Journal of Geophysical Research*, vol. 109, D22206, doi:10.1029/2004jd005025.
- Pfeifer, G., Harrison, R., Lynam, D., 1999. Personal exposures to airborne metals in London taxi drivers and office workers in 1995 and 1996. *The Science of the Total Environment* 235, 253-260.
- Raut, J.-C., and Chazette, P., 2007. Retrieval of aerosol complex refractive index from a synergy between lidar, sunphotometer and in situ measurements during LISAIR experiment, *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 2797-2815.

Raut, J.-C., Chazette, P. and Fortain, A., 2008. Characterization of aerosols in an underground railway station in Paris: Optical, microphysical and chemical measurements, Atmospheric Environment, submitted, 2008.

Seinfeld, J. H. and Pandis, S. N., 1998. Atmospheric Chemistry and Physics, John Wiley & Sons, New York, 408 – 440.

Sitzmann, B., Kendall, M., Watt, J., Williams, I., 1999. Characterisation of airborne particles in London by computer-controlled scanning electron microscopy. The Science of the Total Environment 241, 63–73.

Wang, J., Christopher, S.A., 2003. Intercomparison between satellite-derived aerosol optical thickness and PM<sub>2.5</sub> mass: implications for air quality studies. Geophysical Research Letters 30 (21), 2095.

Zielinski, M., Röttgen, H., Fruhmann, G., 1997. Ambient air soot concentrations in Munich public transportation systems, The Science of the Total Environment, 196, 107- 110.